

JAERI - Conf  
2003-017



JP0450175



物質科学シンポジウム  
「タンデム領域の重イオン科学」研究会  
2003年1月8日～1月9日、  
日本原子力研究所東海研究所

2003年10月

(編)池添 博・吉田 忠・竹内 未広

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 2003

編集兼発行 日本原子力研究所

物質科学シンポジウム「タンデム領域の重イオン科学」研究会

2003年1月8日～1月9日、日本原子力研究所東海研究所

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

(編) 池添 博・吉田 忠・竹内 末広

(2003年8月20日受理)

原研タンデム加速器・ブースター施設は、高性能で多様な重イオンビームを提供できることから、原子核物理、核化学、原子分子及び物性、材料などの基礎科学研究への利用を推進してきたところである。過去2回の研究会と同様に本研究会では、これまで2年間で得た成果を報告していただくだけでなく、異分野の研究者間、つまり原子核分野の研究者、物性関連分野の研究者、その他の境界領域の研究者等の間で、活発な討論を行えるようにした。また、今後予想される研究分野まで講演の幅を広げることで新たな重イオンを利用した科学研究の出発点となるように企画した。とくに今回は、KEKとの共同研究による短寿命核ビーム加速装置開発の現状と短寿命核科学研究に向けた研究計画を中心テーマとした。

本研究会は、平成15年1月8日、9日の両日、原研東海研究所の先端基礎研究交流棟大会議室に於いて、延べ190名に及ぶ出席者を得て開催され、厳選した17件の口頭発表と35件余のポスターによる発表が行われた。本まとめは、研究会の報告集である。

**Materials Science Symposium**  
**“Heavy Ion Science in Tandem Energy Region”**  
January 8-9, 2003  
Japan Atomic Energy Research Institute Tokai Research Establishment

(Eds.) Hiroshi IKEZOE, Tadashi YOSHIDA and Suehiro TAKEUCHI

Department of Materials Science  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 20, 2003)

The facility of the JAERI tandem accelerator and its booster has been contributing to advancing heavy ion science researches in the fields of nuclear physics, nuclear chemistry, atomic and solid state physics and materials science, taking advantage of its prominent performances in providing various heavy ions. This meeting, as well as the previous ones held twice, offered scientists from the fields of heavy ion science, including nuclear physics, solid-state physics and cross-field physics, an opportunity to have active discussions among them, as well as to review their research accomplishments in the last two years. Oral presentations were selected from a wider scope of prospective fields, expecting a new step of advancing in heavy ion science. Main topics of the meeting were the status of the JAERI-KEK joint project of developing a radioactive nuclear beam(RNB) facility and research programs related to the RNB.

This meeting was held at Advanced Science Research Center in JAERI-Tokai on January 8th and 9th in 2003, having 17 oral presentations and more than 35 posters, and successfully carried out with as many as 190 participants and a lot of sincere discussions. The proceedings are presented in this report.

We would like to thank all staff of the accelerators section, participants and office workers in the Department of Materials Science for their support.

**Keywords :** Tandem Accelerator, Heavy Ion, Radioactive Nuclear Beam, Nuclear Physics, Nuclear Structure, Nuclear Chemistry, Material, Super Conductor, Radiation Damage

## 目次

1. 研究会プログラム	-----	1
2. 口頭発表		
2.1 タンデム+RNB 加速系の開発	-----	3
竹内 末広		
2.2 不安定核発生用イオン源の開発	-----	7
市川 進一		
2.3 18GHz ECR チャージブリーダー	-----	10
鄭 淳讚		
2.4 短寿命核ビームを用いた物質科学の研究	-----	14
片山 一郎		
2.5 不安定核ビームを用いた核構造研究	-----	18
清水 良文		
2.6 短寿命核ビームによる星の中での重元素合成過程	-----	21
宮武 宇也		
2.7 理研における中性子過剰核の核分光 現在と将来	-----	25
櫻井 博儀		
2.8 Multidimensional Fission-barrier Calculations from Se to SHE; from the proton to the neutron drip lines	-----	29
P. Moller		
2.9 超重元素核化学の現状	-----	37
工藤 久昭		
2.10 反跳生成核分離装置を用いた重元素合成融合反応機構の研究	-----	41
光岡 真一		
2.11 高速イオンの固体内原子衝突における電子励起効果	-----	44
寺澤 倫孝		
2.12 低温でイオン照射した Ni 中の照射欠陥の X 線散漫散乱	-----	49
松本 徳真		
2.13 核分裂で生成する不安定核の崩壊特性の測定	-----	52
河出 清		
2.14 深部非弾性散乱を用いた二重閉殻 $^{68}\text{Ni}$ 近傍の核構造	-----	55
石井 哲朗		
2.15 不安定核をプローブとした物性研究	-----	60
旭 耕一郎		
2.16 重イオン照射した Al-Mg 酸化物の電子励起による損傷	-----	63
有賀 武夫		

## 3. ポスター発表

## 3.1 加速器関連

3.1.1 FEBIAD イオン源からの放出時間測定	-----	66
長 明彦		
3.1.2 RNB 計画用安定核イオンビームの開発	-----	69
松田 誠		

## 3.2 核物理関連

3.2.1 $^{169}\text{Re}$ の回転バンド	-----	72
周 小紅、張 玉虎、鄭 勇、菅原 昌彦、大島 真澄、藤 暢輔、 小泉 光生、長 明彦、早川 岳人、初川 雄一、静間 俊行		
3.2.2 超変形 $\beta$ 振動状態を経由する $^{239}\text{Pu}(d, pf)$ 反応の核分裂片質量数分布	-----	75
西尾 勝久、池添 博、永目 諭一郎、光岡 真一、西中 一朗 L.Duan、佐藤 健一郎、浅井 雅人、羽場 宏光、塚田 和明 篠原 伸夫、市川 進一、大澤 孝明		
3.2.3 K 核異性体の崩壊メカニズム	-----	79
静間 俊行、早川 岳人、森川 恒安、御手洗 志郎、清水 良文		
3.2.4 p 過程と s 過程間の経験則の発見	-----	82
早川 岳人、静間 俊行、梶野 敏貴		
3.2.5 $^{136}\text{Ba}$ における $10^+$ アイソマー	-----	85
甘 再国、藤 暢輔、小川 建吾、中田 仁、大島 真澄、静間 俊行、 早川 岳人、宇都野 穰、長 明彦、初川 雄一、石井 哲郎、 草刈 英榮、菅原 昌彦、劉 忠、張 玉虎		
3.2.6 $A=180$ 領域 Ir 核の指標逆転現象	-----	88
YH.ZHANG、森川 恒安、大島 真澄、藤 暢輔、小泉 光生、 長 明彦、静間 俊行、早川 岳人、菅原 昌彦、草刈 英榮、 S.S.WEN, L.H.ZHU		
3.2.7 $^{86}\text{Kr} + ^{134,138}\text{Ba}$ 核融合反応測定実験について	-----	92
佐藤 健一郎、池添 博、光岡 真一、西尾 勝久、C.J.Lin、S.C.Jeong		
3.2.8 $^{135}\text{La}$ の同位体シフトのレーザー分光	-----	96
飯村 秀紀、小泉 光生、宮部 昌文、大場 正規、篠原 伸夫、石田 佳久、 堀口 隆良、H.A.SCHUESSLER		
3.2.9 質量数 70 近傍の入射核クーロン励起実験	-----	98
長 明彦、小泉 光生、大島 真澄、藤 暢輔、木村 敦、初川 雄一、 関 暁之、菅原 昌彦、草刈 英榮、森川 恒安		
3.2.10 Na 同位体の磁気モーメントによる $N=20$ 魔法数の消滅	-----	101
宇都野 穰、大塚 孝治、水崎 高浩、本間 道雄		
3.2.11 Ge 領域核の変形共存の理解	-----	104
関 暁之、Guo.Lu、坂田 文彦、藤 暢輔、大島 真澄		

## 3.3 核化学関連

- 3.3.1 アクチノイド元素を内包した金属フラーレンの  
HPLC 溶離挙動に関する研究 ----- 107  
秋山 和彦、末木 啓介、塚田 和明、羽場 宏光、浅井 雅人、  
豊嶋 厚史、西中 一朗、市川 進一、菊地 耕一、永目 諭一郎、  
片田 元己、中原 弘道、
- 3.3.2 非対称核分裂モードにおける球形殻効果の励起エネルギー変化 ----- 110  
西中 一朗、谷川 勝至、後藤 真一、永目 諭一郎、西尾 勝久、  
横山 明彦、浅井 雅人、羽場 宏光、市川 進一、塚田 和明、  
秋山 和彦、豊嶋 厚史、工藤 久昭
- 3.3.3 ノーベリウム陽イオン交換挙動に関する研究 ----- 113  
豊嶋 厚史、塚田 和明、秋山 和彦、浅井 雅人、金子 哲也、  
西中 一朗、市川 進一、永目 諭一郎、羽場 宏光、重川 充、  
岩崎 充宏、谷 勇氣、長谷川 浩子、篠原 厚
- 3.3.4 104 番元素ラザホージウムの溶液化学的研究 ----- 116  
塚田 和明
- 3.3.5  $^{241}\text{Bk}$  の EC 崩壊 ----- 119  
浅井 雅人、塚田 和明、市川 進一、阪間 稔、羽場 宏光、  
永目 諭一郎、西中 一朗、秋山 和彦、豊嶋 厚史、金子 哲也、  
大浦 泰嗣、小島 康明、柴田 理尋
- 3.3.6 フッ化水素酸系における Nb, Ta ならびに Pa の陰イオン交換挙動  
105 番元素ドブニウムの溶液化学研究に向けた基礎実験 ----- 122  
羽場 宏光、塚田 和明、浅井 雅人、秋山 和彦、豊嶋 厚史、  
西中 一朗、市川 進一、永目 諭一郎
- 3.3.7  $^{238}\text{U}$  (p,f) で生成する中性子過剰希土類原子核の崩壊エネルギーの測定 ---- 124  
柴田 理尋、末松 倫、河出 清、市川 進一、浅井 雅人、  
塚田 和明、長 明彦、永目諭一郎、小島 康明、谷口 秋洋
- 3.3.8 Rf(Z=104)および同族元素(Zr,Hf)のオンライン等温ガスクロマトグラフ分離---- 128  
金子 哲也、塚田 和明、浅井 雅人、秋山 和彦、豊嶋 厚史、  
石津 秀樹、小野 佐和子、平井 利之、後藤 真一、市川 進一、  
永目諭一郎、工藤 久昭

## 3.4 物性・材料関連

- 3.4.1 Fe-Ni インバー合金の高エネルギー重イオン照射による磁性の改質 ----- 131  
小松 征史、岩瀬 彰宏、石川 法人、知見 康弘、濱谷 祐多郎、  
小野 文久
- 3.4.2 高エネルギーイオン照射によるビスマスの電気的特性の改質 ----- 133  
知見 康弘、岩瀬 彰宏、石川 法人

3.4.3	高エネルギー重イオン照射した白金における欠陥生成と照射アニーリング	--	136
	知見 康弘、岩瀬 彰宏、岩田 忠夫		
3.4.4	炭素繊維の力学特性に及ぼすイオン照射の影響	-----	139
	車田 亮、今村 好男、奥 達雄、石原 正博、馬場 信一、相原 純		
3.4.5	宇宙用 Power MOSFET/バイポーラトランジスタの 重イオン照射耐性に関する研究	-----	142
	新藤 浩之、池田 直美、久保山 智司、松田 純夫、平尾 敏雄、 神谷 富祐		
3.4.6	複数原子イオンによる電子励起とその効果	-----	145
	金子 敏明		
3.4.7	多価イオンの高分解能0度電子分光	-----	148
	今井 誠、左高 正雄、北澤 真一、西尾 勝久、杉山 康治、 川面 澄、高廣 克巳、小牧 研一郎、柴田 裕実、俵 博之、 東 俊行、金井 保之、山崎 泰規		
3.4.8	高エネルギーイオン照射によるセラミックス中の電子励起効果	-----	151
	松波 紀明、福岡 修、左高 正雄、岡安 悟、岩瀬 彰宏		
3.4.9	MgB <sub>2</sub> の照射効果	-----	153
	岡安 悟、左高 正雄、池田 博、吉崎 亮造		
3.4.10	高エネルギーイオン照射したLi <sub>2</sub> TiO <sub>3</sub> の非晶質化	-----	155
	中沢 哲也、V.Grismanovs、八巻 大樹、片野 吉男、有賀 武夫		
3.4.11	ナノクリスタルにおける照射欠陥の観察	-----	158
	大塚英男、須貝 宏行、北條 喜一		
3.4.12	EuBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>y</sub> 高温超伝導体の重イオン照射効果及びアニール効果	-----	160
	広瀬 篤志、岩瀬 彰宏、石川 法人、知見 康弘、橋本 健男、 佐藤 浩行、道上 修		
3.4.13	イットリアで安定化したジルコニアの高エネルギー重イオン照射効果	----	163
	北條 喜一		
3.4.14	核分裂片照射効果を模擬したCeO <sub>2</sub> への高エネルギーイオン・電子照射試験	-	167
	園田 健、木下 幹康、知見 康弘、石川 法人、岩瀬 彰宏、安田 和弘		



## Contents

1. Symposium Program	-----	1
2. Oral Session		
2.1 Development of Tandem Accelerator and its Radioactive Nuclear Beam Acceleration System -- S. Takeuchi		3
2.2 Development of the Ion Sources for Radioactive Nuclear Beams ----- S. Ichikawa		7
2.3 18GHz ECR Charge Breeder ----- S.C. Jeong		10
2.4 Study of Material Science with Short-lived Nuclear Beams ----- I. Katayama		14
2.5 Nuclear Structure Study by Using Unstable Nuclear Beam ----- Y.R. Shimizu		18
2.6 Study of Astrophysical Heavy Element Synthesis with RNB ----- H. Miyatake		21
2.7 Spectroscopy on Neutron-rich Nuclei at RIKEN -Present and Future- ----- H. Sakurai		25
2.8 Multi-Dimensional Fission-Barrier Calculation from Se to the SHE; from the Proton to the Neutron Drip Lines ----- P. Moller		29
2.9 Status of Super Heavy Element Research in Japan ----- H. Kudo		37
2.10 Study of Effects of Nuclear Deformation and Nuclear Shell Structure on Heavy-ion Fusion Reaction by using JAERI-RMS ----- S. Mitsuoka		41
2.11 Electronic Excitation in Ion-atom Collision in Solids ----- M. Terasawa		44
2.12 Defect Structure in Ion Irradiated Nickel at Low Temperature by X-ray Diffuse Scattering --- N. Matsumoto		49
2.13 Measurement of Decay Properties of Unstable Nuclei Produced in Fission ----- K. Kawade		52
2.14 Nuclear Structure of the Doubly-magic $^{68}\text{Ni}$ Region Produced in Deep-inelastic Collisions -- T. Ishii		55
2.15 Condensed Matter Studies with Radioactive Ion Beams ----- K. Asahi		60
2.16 Depth-dependent Damages in Al-Mg Oxides Irradiated with Energetic Iodine Ions ----- T. Aruga		63

## 3. Poster Session

3.1 Accelerators

3.1.1 Measurement of Release Time from the FEBIAD Ion Source	-----	66
A.Osa, M.Matsuda, S. Ichikawa, I. Katayama and S.C. Jeong		
3.1.2 Development of Stable Ion Beams for the RNB Project	-----	69
M.Matsuda, T. Nakanoya		

3.2 Nuclear Physics

3.2.1 Rotational Bands of $^{169}\text{Re}$	-----	72
X.H. Zhou, Y.H. Zhang, Y. Zheng, M. Sugawara, Y. Toh, M. Oshima, T. Koizumi, A.Osa, T.Hayakawa, Y. Hatsukawa, T. Shizuma		
3.2.2 Fragment Mass Distribution of the $^{239}\text{Pu}(d, pf)$ Reaction via the Super-deformed $\beta$ -vibrational Resonance	-----	75
K.Nishio, H.Ikezoe, Y.Nagame, S.Mitsuoka, I.Nishinaka, L.Duan, K.Satou, M.Asai, H.Haba, K.Tsukada, N.Shinohara, S.Ichikawa, T.Ohsawa		
3.2.3 Decay Mechanism of <i>K</i> Isomers	-----	79
T.Shizuma, T.Hayakawa, T.Morikawa, S.Mitarai, Y.Shimizu		
3.2.4 Discovery of Universal Scaling Relationships between P- and S- Process Nuclides	-----	82
T.Hayakawa, T.Shizuma, T.Kajino		
3.2.5 A New Isomer in $^{136}\text{Ba}$ Populated by Deep-inelastic Collisions	-----	85
Z.Gan, Y.Toh, K.Ogawa, H.Nakada, M.Oshima, T.Shizuma, T.Hayakawa, Y.Utsuno, A. Osa, Y.Hatsukawa, T.Ishii, H.Kusakari, M.Sugawara, Z.Liu, Y.H.Zhang		
3.2.6 Signature Inversion in $A \sim 180$ Ir Nuclei	-----	88
Y.H.Zhang, T.Morikawa, M.Oshima, Y.Toh, M.Koizumi, A.Osa, T.Shizuma, T.Hayakawa, M.Sugawara, H.Kusakari, S.S.Wen, L.H.Zhu		
3.2.7 Fusion Measurements for the Reactions $^{86}\text{Kr} + ^{134}\text{Ba}$ and $^{86}\text{Kr} + ^{138}\text{Ba}$	-----	92
K.Satou, H.Ikezoe, S.Mitsuoka, K.Nishio, C.J.Lin, S.C.Jeong		
3.2.8 Isotope Shifts of $^{135}\text{La}$ by Collinear Laser Spectroscopy	-----	96
H.Iimura, M.Koizumi, M.Miyabe, M.Oba, N.Shinohara, Y.Ishida, T.Horiguchi, H.A.Schuessler		
3.2.9 Coulomb Excitation Experiments of Nuclei with Mass around 70	-----	98
A.Osa, M.Koizumi, M.Oshima, Y.Toh, A.Kimura, Y.Hatsukawa, A.Seki, M.Sugawara, T.Morikawa, H.Kusakari,		
3.2.10 Disappearance of the $N=20$ Magic Number Studied by Electromagnetic Moments of Na Isotopes	-----	101
Y.Utsuno, T.Otsuka, T.Mizusaki, M.Honma		
3.2.11 An Understanding of Deformation Coexistence of Ge	-----	104
A.Seki, G.Lu, F.Sakata, Y.Toh, M.Oshima		

3.3 Nuclear Chemistry

3.3.1 HPLC Elution Behavior of Metallofullerenes Encapsulating Actinide Elements -----	107
K.Akiyama, K.Sueki, K.Tsukada, H.Haba, M.Asai, A.Toyoshima, I.Nishinaka, S.Ichikawa, K.Kikuchi, Y.Nagame, M.Katada, H.Nakahara	
3.3.2 Excitation Energy Dependence of Shell Effects in Asymmetric Fission Mode -----	110
I. Nishinaka, M.Tanikawa, S.Goto, Y.Nagame, K.Nishio, A.Yokoyama, M.Asai H.Haba, S.Ichikawa, K.Tsukada, K.Akiyama, A.Toyoshima, H.Kudo	
3.3.3 Cation Exchange Behavior of Nobelium -----	113
A.Toyoshima, K.Tsukada, K.Akiyama, M.Asai, T.Kaneko, I.Nishinaka, S.Ichikawa, Y.Nagame, H.Haba, M.Shigekawa, M.Iwasaki, Y.Tani, H.Hasegawa, A.Shinohara	
3.3.4 Aqueous Chemistry of Rutherfordium(Element 104) -----	116
K.Tsukada	
3.3.5 EC Decay of <sup>241</sup> Bk -----	119
M.Asai, K.Tsukada, S.Ichikawa, M.Sakama, H.Haba, Y.Nagame, I.Nishinaka, K.Akiyama, A.Toyoshima, T.Kaneko, Y.Oura, Y.Kojima, M.Shibata	
3.3.6 Anion Exchange Behavior of Nb, Ta, and Pa in Hydrofluoric Acid Solutions -Model Experiments for Chemical Characterization of Element 105, Dubnium- ----	122
H.Haba, K.Tsukada, M.Asai, K.Akiyama, A.Toyoshima, I.Nishinaka, S.Ichikawa, Y.Nagame	
3.3.7 $Q_{\beta}$ Measurements of Neutron-rich Rare-earth Nuclei Produced with Proton Induced Fission of <sup>238</sup> U -----	124
M.shibata, O.Suematsu, K.Kawade, S.Ichikawa, M.Asai, K.Tsukada, A.Osa, Y.Nagame, Y.kojima, A.Taniguchi	
3.3.8 On-line Isothermal Gas Chromatography of Rf(Z=104) and its Homologs(Zr,Hf) -----	128
T.Kaneko, K.Tsukada, M.Asai, K.Akiyama, A.Toyoshima, H.Ishizu, S.Ono, T.Hirai, S.Goto, S.Ichikawa, Y.Nagame, H.Kudo	

3.4 Atomic Physics, Solidstate Physics and Radiation Effect in Materials

3.4.1 Modification of Magnetic Properties in Fe-Ni Invar Alloys by High Energy Heavy Ion Irradiation -----	131
S.Komatsu, A.Iwase, N.Ishikawa, Y.Chimi, Y.Hamaya, F.Ono	
3.4.2 Modification of Electrical Properties of Bismuth by Energetic Ion Irradiation -----	133
Y. Chimi, A.Iwase, N.Ishikawa	
3.4.3 Defect Production and Radiation Annealing in Platinum Irradiated with High-energy Heavy Ions -----	136
Y.Chimi, A.Iwase, T.Iwata	
3.4.4 Effects of Ion Irradiation on Mechanical Properties of Carbon Fibers -----	139
A. Kurumada Y.Imamura, T.Oku, M.Ishihara, S.Baba, J.Aihara	

3.4.5	Study about the Heavy-ion Irradiation Tolerance of Power MOSFET and Bipolar Junction Transistors for Space Use -----	142
	H.Sindo, N.Ikeda, S.Kuboyama, S.Matsuda T.Hirao, T.Kamiya	
3.4.6	Electron Excitation by Swift Polyatomic Ions and its Effect -----	145
	T.Kaneko	
3.4.7	High-resolution Zero-degree Electron Spectroscopy of Highly Charged Ions -----	148
	M.Imai, M. Sataka, S.Kitazawa, K.Nishio, K.Sugiyama, K.Kawatsura, K.Takahiro K.Komaki, H.Shibata, H.Tawara, T.Azuma, Y.Kanai, Y.Yamazaki	
3.4.8	Electronic Excitation Effects on Oxide Ceramics by High Energy Ions -----	151
	N.Matsunami, O.Fukuda, M.Sataka, S.Okayasu, A.Iwase	
3.4.9	Irradiation Effects on MgB <sub>2</sub> Sintered Samples -----	153
	S.Okayasu, M.Sataka, H.Ikeda, R. Yoshizaki	
3.4.10	Disordering in Li <sub>2</sub> Ti <sub>3</sub> O <sub>3</sub> Irradiated with High Energy Ions -----	155
	T.Nakazawa, V.Grismanovs, T.Yamaki, Y.Katano, T.Aruga	
3.4.11	Observation of Radiation Damage in Nanocrystalline -----	158
	H.Ohtsuka, H.Sugai, H.Hojou	
3.4.12	Heavy Ion Irradiation Effects and Annealing Effects in -----	160
	EuBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>y</sub> High-Tc Superconductors	
	A.Hirose, A.Iwase, N.Ishikawa, Y.Chimi, T.Hashimoto, H.Sato, O.Michikami	
3.4.13	Irradiation Effects on Ytria-stabilized ZrO <sub>2</sub> Irradiated with Neon Ions and High Energy Iodin Ions -----	163
	K.Hojou, T.Hojo, J.Aihara, S.Furuno, N.Nitani, T.Yamashita, K.Minato, T.Sakuma	
3.4.14	Radiation Effects in CeO <sub>2</sub> under High Energy Ion and Electron Irradiation as Simulations of Fission Field in Nuclear Fuels -----	167
	T.Sonoda, M.Kinosita, Y.Chimi, N.Ishikawa, A.Iwase, K.Yasuda	

1. —物質科学シンポジウム—

タンデム領域の重イオン科学研究会

— RNB 開発と利用に向けて —

主催 日本原子力研究所 物質科学研究部  
加速器管理室

会場 日本原子力研究所東海研究所  
先端基礎研究交流棟  
講演： 大会議室  
ポスター： ロビー

1月8日(水)

開会の挨拶 日本原子力研究所  
東海研究所 副所長 岩本 昭

セッション1 加速器 座長 片山 一郎 —KEK—

1-1	10:15	タンデム+RNB加速系の開発	竹内 未広 (原研)
1-2	10:50	不安定核発生用イオン源の開発	市川 進一 (原研)
1-3	11:25	18GHzECR チャージブリーダー	鄭 淳讚 (KEK)

12:00-13:00 昼食

セッション2 RNBに関する講演1 座長 大島 真澄 —原研—

2-1	13:00	短寿命核ビームを用いた物質科学の研究	片山 一郎 (KEK)
2-2	13:35	不安定核ビームを用いた核構造研究	清水 良文 (九州大)
2-3	14:10	短寿命核ビームによる星の中での重元素合成	宮武 宇也 (KEK)

14:45-15:00 休憩

セッション3 RNBに関する講演2 座長 坂田 文彦 —茨城大学—

3-1	15:00	急病により講演中止	
3-2	15:35	理研における中性子過剰核の核分光 現在と将来	櫻井 博儀 (東京大)

16:10-18:00 ポスターセッション + 施設見学  
18:20-20:00 懇親会

1月9日(木)

セッション4 核化学・核物理

座長 大槻 勤 一東北大学一

- 4-1 9:10 Multidimensional Fission Barrier Calculations from Se  
to the SHE; from the proton to the neutron drip line Peter Möller (LANL)
- 4-2 9:45 超重元素核化学の現状 工藤 久昭 (新潟大)
- 4-3 10:20 反跳生成核分離装置を用いた重元素合成融合反応機構の研究 光岡 真一 (原研)

10:55-11:05 休憩

セッション5 物性1

座長 前田 裕司 一広島国際学院大学一

- 5-1 11:05 高速イオンの固体内原子衝突における電子励起効果 寺澤 倫孝 (姫路工業大)
- 5-2 11:40 低温照射したNi 中の照射欠陥のX線散漫散乱 松本 徳真 (原研)

12:15-13:00 昼食

セッション6 核構造

座長 佐川 弘幸 一会津大学一

- 6-1 13:00 核分裂で生成する不安定核の崩壊特性の測定 河出 清 (名古屋大)
- 6-2 13:35 深部非弾性散乱を用いた二重閉殻Ni-68 近傍の核構造研究 石井 哲朗 (原研)

14:10-14:25 休憩

セッション7 物性2

座長 左高 正雄 一原研一

- 7-1 14:25 不安定核をプローブとした物性研究  
理研RIBFに向けて 旭 耕一郎 (東工大)
- 7-2 15:00 重イオン照射したAl-Mg 酸化物の電子励起による損傷 有賀 武雄 (原研)

15:35-15:45 閉会の挨拶 物質科学研究部  
部長 館盛 勝一



## 2. 口頭発表

### 2.1 タンデム + RNB 加速系の開発

竹内末広

原研 物質科学研究部 加速器管理室

#### 1. はじめに

原研東海のタンデム加速器は 1982 年利用開始以来 20 年が経過した。運転・利用は順調で、年間の利用日数は 185-230 日を維持してきた。その間、1994 年には後段加速器として加速エネルギーを 2-4 倍に増強する超伝導ブースターが完成し、中重核以上の重イオンビームでも核反応を伴う実験が可能になり、また 1998 年に高電圧端子内に高多価イオンを発生できる ECR イオン源を装着したことで高強度の稀ガスイオン等が加速できるようになり、加速器施設として充実してきた感がある。

しかし、タンデム加速器自身は性能維持に時間をかけるよりも少しでも多くの利用を満たしてきたため運転電圧が、当初 18MV であったのが 16MV に低下している状況にある。これまではこの電圧性能でも十分利用して来られたが今後の利用を考えると問題である。そこで、加速管を更新して建設時の設計電圧の 20MV 実現を計画してきた。また、高電圧端子内に設置した ECR イオン源は第 1 段階として最も小型のイオン源を装着しており、十分経験を積んだ今第 2 段階として高性能の ECR イオン源に取り替え満足なビーム性能を得る時期にある。

一方、放射性核種のイオンビームの加速計画は、初め大強度陽子加速器の 1 施設として提案されてきたが、原研の大強度陽子加速器計画と KEK の JHF 計画との統合により、原研の RI ビーム加速施設計画と KEK の E アレーナ計画も統合案が出された。しかし、更に変遷し最終的には KEK の短寿命核加速実験装置を原研タンデムへ移設し、原研のタンデムの陽子ビーム等を使ってウラン標的の核分裂生成核ビーム等を加速する計画に落ち着いた。原研はこの計画をタンデム・ブースター多元利用計画と呼び、2001 年から KEK 素核研との共同研究で開発を進めている。

東海研タンデム加速器ではこれら 3 つの開発を現在進めており、それぞれについて概要を以下に述べる。

#### 2. 加速管を交換し加速電圧を 18-20MV にする計画について

タンデムの加速電圧を 18-20MV に引き上げると何が期待できるかということ、単にタンデムからのビームのエネルギーが増すだけでなくブースターへの入射条件が高質量数の重イオンビームに対して飛躍的に改善され、そのビーム強度を増強でき、最重核のイオンビームまで加速が可能となる。

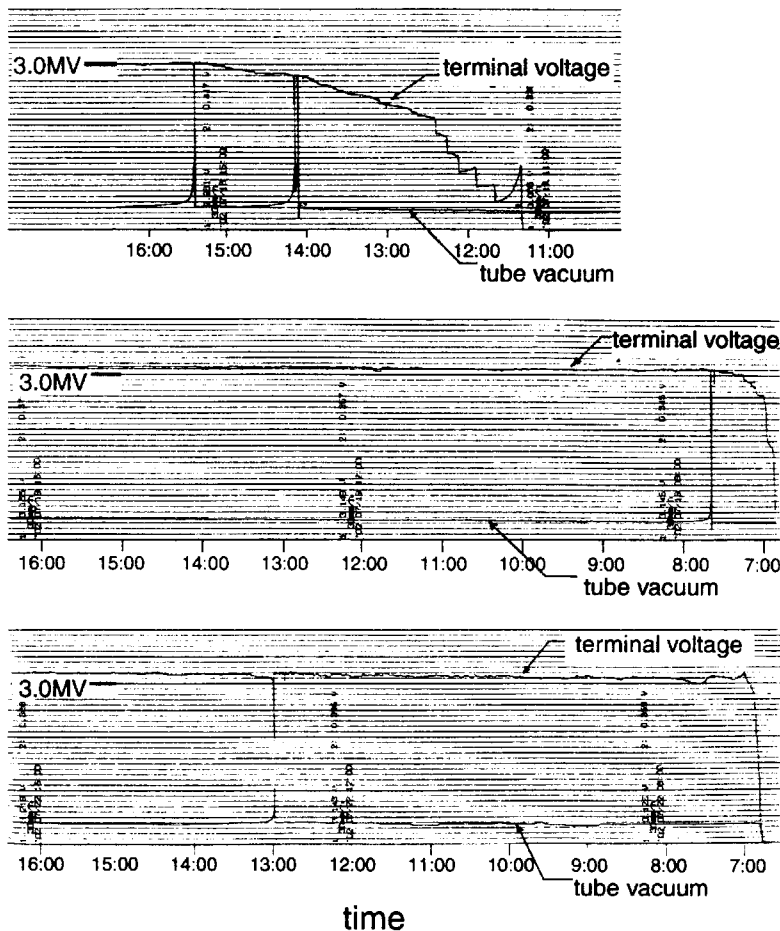
電圧性能は主に加速管の内部、特に絶縁真空壁としてのセラミック表面に沿っての放電の問題で制限されている。そこで加速管を加速ギャップの多いコンプレッド・ジオメトリ型の新加速管に変更することで性能改善が期待できる。従来は長さ 173mm、ギャップ数 11 の加速管と厚さ 30mm のヒーター・プレートが交互に積み重なっているが、ヒーター・プレートは不要の存在である。その分長さ 305mm のギャップ数 21 の新加速管に更新することで、ギャップ数は約 26%増える。しかし、必ずしも期待通りに行くとは限らない。

新品の加速管は期待する性能が出るまでコンディショニングに時間がかかる。特に大型タンデムでは数ヶ月を要し、更新計画に於いては工夫が必要である。また、購入した新加速管のセラミック絶縁体表面が清浄な良い状態とは限らない。そこで、超伝導加速空洞の

開発で培った表面洗浄技術である高圧超純水洗浄を加速管内面に施し放電の元凶と考えられる表面の汚れを落とせば、加速管更新後のコンディショニングを短期化でき、かつ性能を確実に達成できるのではないかと考え、洗浄効果を研究し、以下の成果を得た。

加速管のアルミナセラミックには表面にゆるく付着した微粒子（多くはセラミックの微粒子と考えられる）が多く存在し、高圧超純水洗浄で除去できた。旧加速管のセラミックより新加速管のセラミックの方がゆるく付着した微粒子が多かった。他にも、結晶粒の大きさ、ガスの含有率、脱ガス特性、電子増倍効果などを調べたが、実際の加速管で高電圧テストを2つ行った。第1段階は、高圧超純水洗浄し脱ガスを施したスペア用の旧加速管6本をタンデム加速器の加速管と交換し1MVの耐電圧試験を行った。過去の記録では電圧上昇中大小の放電が頻繁に起ったが、そのようなことはなく、僅かな放電が起っただけで電圧は順調に上昇し、1.07MVで安定であることが確かめられた。第2段階としては、実際に交換する新加速管のうち3MV分の6本を高圧超純水洗浄し脱ガスを施しNEC社に送って高電圧試験を実施した。ただし、洗浄をより完璧にするため、超音波洗浄の追加、倍の時間の高圧超純水洗浄を課した。結果は、記録を第1図に示す。3日にわたる合計約24時間の試験で僅か2-3回の放電が発生しただけで、極めて安定な3.2MVの状態が達成された。20数年前のタンデムの検収の前のコンディショニングの記録、あるいは納入前の新加速管の電圧試験記録は定格電圧以下から頻繁な大放電、連続的な小放電があったことと較べると、そのような悲惨な状況は全くない。これで加速管更新に向け確固とした展望が開けた。

加速管更新は2003年3月からを予定しており3-4ヶ月を要する。新加速管80本は超音波と高圧超純水洗浄と2週間の真空脱ガス処理が終わり、実施を待つばかりである。



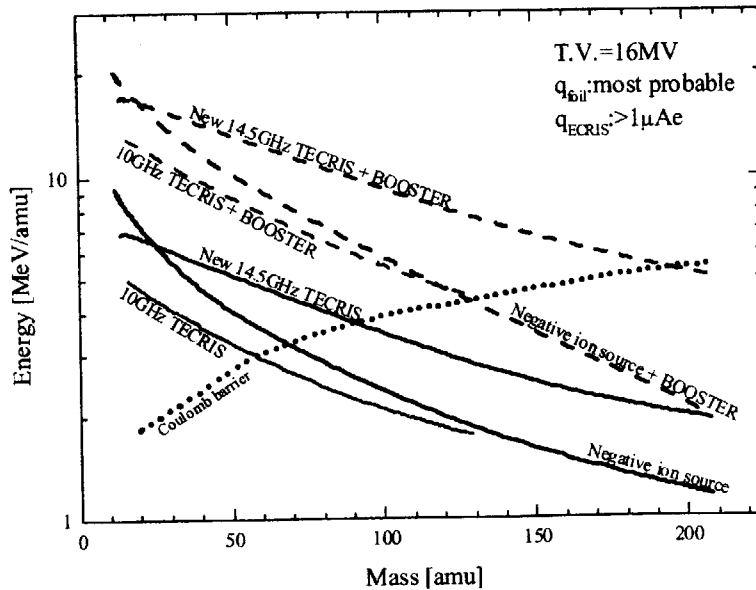
第1図 新加速管の3MV高電圧試験記録チャート



3. 高電圧端子内 ECR イオン源を増強する計画について

現在の高電圧端子内の ECR イオン源は、NANOGAN という小型の 10GHz のイオン源で、かつて中性子発生目的のイオン源が装着されていたイオン源デッキ位置に装着されており、高エネルギー加速管側にある。これをもって高性能な 14.5GHz の SUPER-NANOGAN に取り替える。どちらも永久磁石を使用している。性能は電荷が約 1.5 倍になりタンデムで負イオンから加速したイオンと比べてもエネルギーが約 1.5 倍となる(第2図)。かつ、ビーム強度がタンデムの加速限界の強度、または 1-数 $\mu$ A が期待できる。設置場所は大型化するため現在の位置には設置困難なため低エネルギー加速管側へ移設する計画である。そのためガスストリッパーが撤去され入射マグネットと 80kV の加速管が置かれる。ビームが 180°偏向電磁石を通るためそれが高分解能 ( $M/\Delta M$ =約 140) の質量分析電磁石として役立ち、高エネルギー加速管への入射条件、ハンドリングが改善され、安定なビーム光学系が構築できる。

実施時期は、現在行われているタンク内で運転するための使用条件を確立する SUPER-NANOGAN のベンチテストが終わった後、あるいは加速管の更新後 1 年以内を想定している。



第2図 高電圧端子内 ECR イオン源として 10GHz の ECRIS(NANOGAN) を用いた場合、14.5GHz の ECRIS(SUPER-NANOGAN)を用いた場合および負イオン源から加速した場合のタンデム、ブースターの加速ビームエネルギー性能の比較

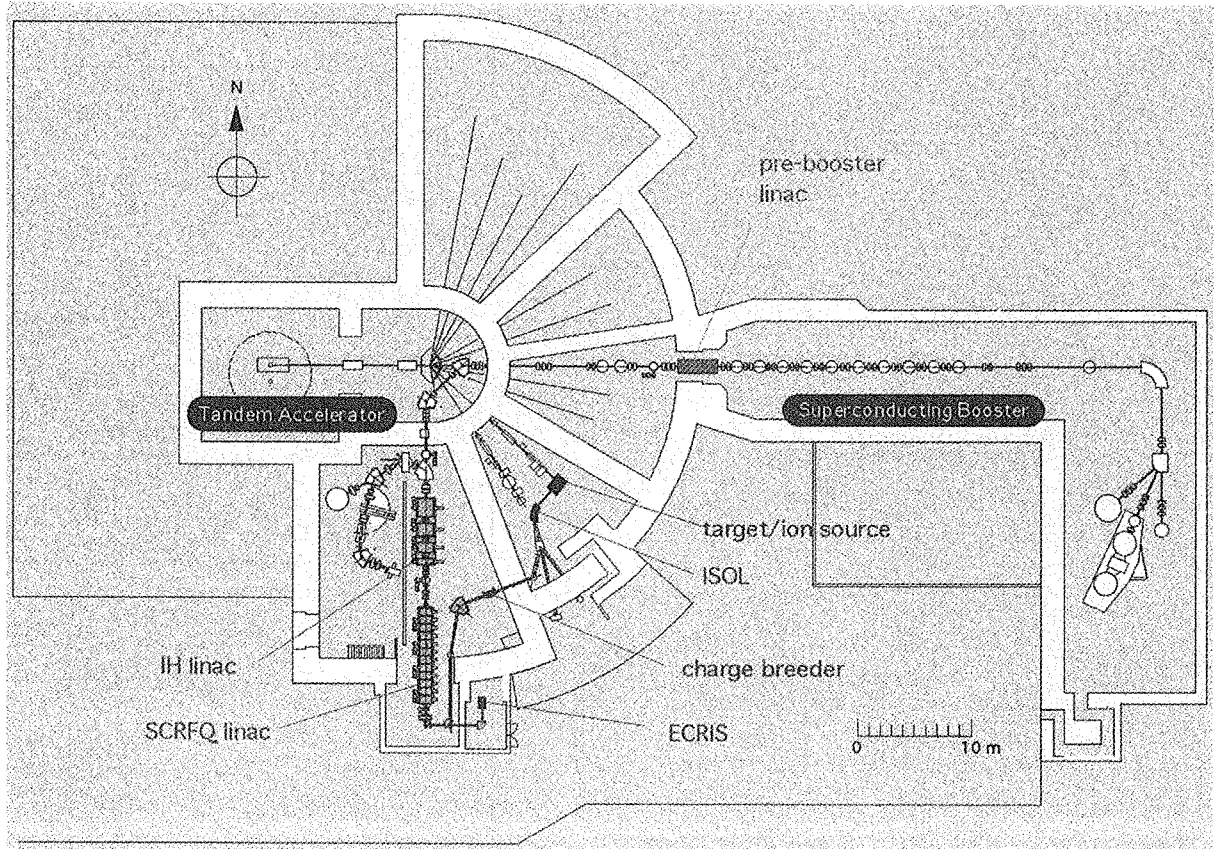
4. Radioactive Nuclear Beam 加速計画について

第3図に RNB 加速系の配置図を示す。14 年度末までに電気設備等を残し建家改築が終わり、15 年度には KEK から SCRFQ リニアック、IH リニアックそしてチャージブリーダが搬入され据え付けされる予定である。16 年度内には 1MeV/u のファーストビームを加速する目標で RNB イオン源、SNB (安定核種イオンビーム) イオン源、加速器、ファーストビーム実験、許認可手続き、安全系、制御系等の準備が進んでいる。1MeV/u のファーストビームで行う実験の研究テーマとしては、不安定核のクーロン励起による核構造研究、天体核反応研究、超イオン伝導体キャリア等の拡散機構の研究、摂動核相関による

電子励起の微視的観察、などがこれまでに提案されている。

ブースターで更に加速するには 2MeV/u まで加速する前置ブースターが必要である。加速空洞の開発が必要で、原研としては最適ビーム速度が光速の 6% の 2 軸 3 加速ギャップの 1/4 波長加速空洞の開発を検討している。この領域の超伝導空洞は周波数安定度と製作技術、そして製作単価の点で最も設計困難な領域であり、十分な研究・検討が必要である。空洞数は加速部だけで 12 空洞程度必要である。空洞を冷却するクライオスタットについては経済的側面から、一部または全部の空洞を現在のブースターの空洞と置き換える合理化が必要であろう。それによってヘリウム冷却系の増強、改造が必要無くなる。

前置ブースターが実現すれば最大約 8MeV/u のビームエネルギーをもつ RNB あるいは SNB がブースター・ターゲット室で利用できる。RNB のビーム強度は  $10^4$ - $10^6$  個/秒で 1MeV/u のビームの強度よりやや減少するが、SNB は現在のブースターのビーム強度と比べ 10-1000 倍の 1-数  $\mu$ A が期待できる。RNB による不安定核関連の研究は勿論のこと、SNB による超重核合成実験、アクチノイド核化学の実験等に有用な加速器施設となる。ただし、実現するには建家施設の改造をも伴い大きな予算を必要とする。



第3図 原研タンデム・ブースターにおける RNB 加速装置の配置図



## 2.2 不安定核発生用イオン源の開発

市川 進一  
原研DEVELOPMENT OF THE ION SOURCES FOR RADIOACTIVE NUCLEAR BEAMS  
Shin-ichi ICHIKAWA  
JAERI

## 【はじめに】

現在、原研と KEK との共同研究にもとづき、再加速型の短寿命加速装置の構築がタンデム加速器施設で進められている。この施設で加速を計画している二次ビーム (RNB : Radioactive Nuclear Beam) は、ウランの陽子誘起核分裂で生成する中性子過剰核、核子移行反応で生成する安定領域近傍の軽い核、重イオン融合反応で生成する陽子過剰核を予定している。これら RNB の生成と引き出しには、ウラン標的装着型 FEBIAD イオン源と表面電離型イオン源を用いる。ここでは、短寿命核の分離を目的に開発されたオンライン同位体分離器 (ISOL) 用イオン源とイオン源に要求される性能について述べ、原研-KEK で開発を進めているイオン源と今後の予定について記述する。

## 【ISOLで用いられている代表的なイオン源】

短寿命核の同位体分離には、主に、低圧アーク放電型と表面電離型イオン源が用いられている。また、特殊な目的で原子固有の波長の光により励起しイオン化するレーザーイオン源や、ECR (電子サイクロトロン共鳴) イオン源が開発されている。

低圧アーク放電型イオン源は、Nielsen 型イオン源を基本に、GSI の Kirchner らにより開発された FEBIAD (Forced Electron Beam Induced Arc Discharge) と呼ばれるイオン源 [1] に代表される。このイオン源の特徴は、放電領域に熱電子を放出するフィラメントが内蔵されていないことにある。これにより、フィラメントの破壊や過大な電子の放出を抑制することができ、安定した動作が確保される。核反応で生成した不安定核を用いたイオン化効率の測定では、Sn: 54%, Ag: 55%, Ge: 41% の値が報告されている。また安定同位体をタンデム加速器からイオン源の標的に打ち込みつつ分離したときの効率測定では、Cu: 10%, Ga: 30%, Se: 2.4%, Br: 4% という値が得られている [2]。この様に比較的高い効率を得る事ができる FEBIAD イオン源は、GSI や ORNL のオンライン同位体分離施設において用いられている。また、CERN の ISOLDE と呼ばれるオンライン同位体分離施設では、FEBIAD イオン源を基本に大量の標的物質を装着できるイオン源を開発した [3]。表面電離型イオン源は、熱せられた金属表面と原子間の電子の授受により、イオン化する原理に基づいている。このイオン源では、電離電圧約 6 eV 程度の元素までイオン化が可能である。動作はきわめて安定しており、アルカリ、アルカリ土類および希土類元素のイオン化に広く用いられている [4]。

ECR イオン源は、He, N, O, Ne 等気体元素のイオン化効率が高いという特徴を有し、カナダの TRIUMF/TISOL [5] や Leuven [6] 等で永久磁石を使った小型の二次ビーム用イオン源が開発されている。

### 【イオン源に要求される性能】

ISOL で用いるイオン源の性能は、核反応で生成する不安定核の数は限られておりまた短寿命であることから、高いイオン化効率と速い引き出し時間が要求される。すなわち、イオン源から引き出される不安定核のビーム強度は、一次加速器から得られるビーム強度、標的物質の原子数、着目した放射性核種の生成断面積、イオン化効率、標的物質からイオン源への移行率およびイオンの引き出し効率に依存する。また、不安定核が生成後イオンとして引き出されるまでの時間が、着目核種の半減期より長いと、核崩壊によりその強度は指数関数的に減少する。これは、引き出し時間が、標的物質からの拡散時間とイオン源表面での吸脱着時間に依存することで理解されている。そこで、迅速な引き出しを可能にするには、標的物質とイオン源を高い温度、できれば 2000°C 以上、に均一に加熱する必要がある。標的の開発では、着目原子の早い拡散を可能にし、高い温度で安定な組成に最適化する必要がある。

### 【原研-KEKのRNB計画におけるイオン源開発】

ウランの陽子誘起核分裂で生成するCoからDyまで40元素の内、表面電離型イオン源で、アルカリ、アルカリ土類、希土類元素のイオン化が、FEBIADイオン源で周期表の1B、IIBおよび、IIIAから希ガスのVIII族元素までのイオン化ができ、約30元素の核種を引き出すことが可能である。そこで、ウラン標的装着型FEBIADイオン源と表面電離型イオン源を設計・製作した。

ウラン標的装着型FEBIADイオン源のハウジングを模式的にFig.1(a)に、Fig.1(b)にFEBIADイオン源部を示す。ウラン標的は $2.6\text{g/cm}^2$ のウラン炭化物を装着できる構造であり、イオン化室に直結する構造とした。標的部は電子衝撃で加熱する方式である。このように、標的部とイオン化室を近づけたことで、標的から熱拡散で離散した着目核種を迅速にイオン化室へ移送する事が可能である。

表面電離型イオン源を模式的にFig.2に示す。このイオン源もFEBIADイオン源と同様に $2.6\text{g/cm}^2$ のウラン炭化物を装着可能である。加熱は、これまで開発した表面電離型イオン源と同様に電子衝撃による加熱を基本とした。これにより、2700Kまでの昇温が可能であり、アルカリ、アルカリ土類、希土類元素の効率良いイオン化が期待される。

両イオン源とも、Fig.1(a)に示した様に、真空を保持するバルブと共にイオン源ハウジングごとベースプレート上に組み立てる構造である。一体構造であるイオン源ユニットは、簡単な移送機構でISOLの加速箱に設置される。なお、遠隔着脱機構と一時保管庫など安全取扱機構は現在設計中である。

### 【分子イオン分離法と今後の計画】

通常、原子核の崩壊などに用いるISOLでは、質量分解能の不足から、同重体までを分離するには不可能である。この事は、ISOLをRNB加速器の入射器とした場合、着目核種以外の核種の混入が生じる事を意味し、引き続き実験に支障をきたすと考えられる。この困難さを解決する方法の1つに、元素の化学的性質を利用しイオン源内で化合物を生成させイオン化する、分子イオン分離法がある。

事実、分子イオン分離法は様々な研究所で開発されている。たとえば、アルカリ土類元素のBa、Srはフッ化物イオン $\text{MF}^+$ で分離することで、効率100%の達成とCsからの分離を、希土類元素のLaを酸化物イオン $\text{MO}^+$ で分離する事で、Ba,Csからの分離を達成している。また、中性子過剰と陽子過剰側で、二重閉殻構造をもつSn同位体の分離では、硫化物 $\text{SnS}^+$ イオンの分離に成功している（参考文献[7]及びその引用文献を参照）。この分子イオン分離法は、ビームの純度を向上させると共に、迅速なイオン源からの引き出しを可能にする。

今後は、様々な元素に対し分子イオン分離法の開発を図ると共に、効率良く迅速なイオンの引き出しを目指し標的とイオン源の最適化を計画している。

【参考文献】

- [1] R.Kirchner *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **133**(1976)187.
- [2] H. K.Carter *et al.*, private communication.
- [3] S.Sundell *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B70**(1992)160.
- [4] S.Ichikawa *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **A274**(1989)256.
- [5] L.Buchmann *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B62**(1992)521.
- [6] P.Decrock *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B58**(2003)252.
- [7] R.Kirchner Nucl. Instr. Meth. **B204**(2003)179.

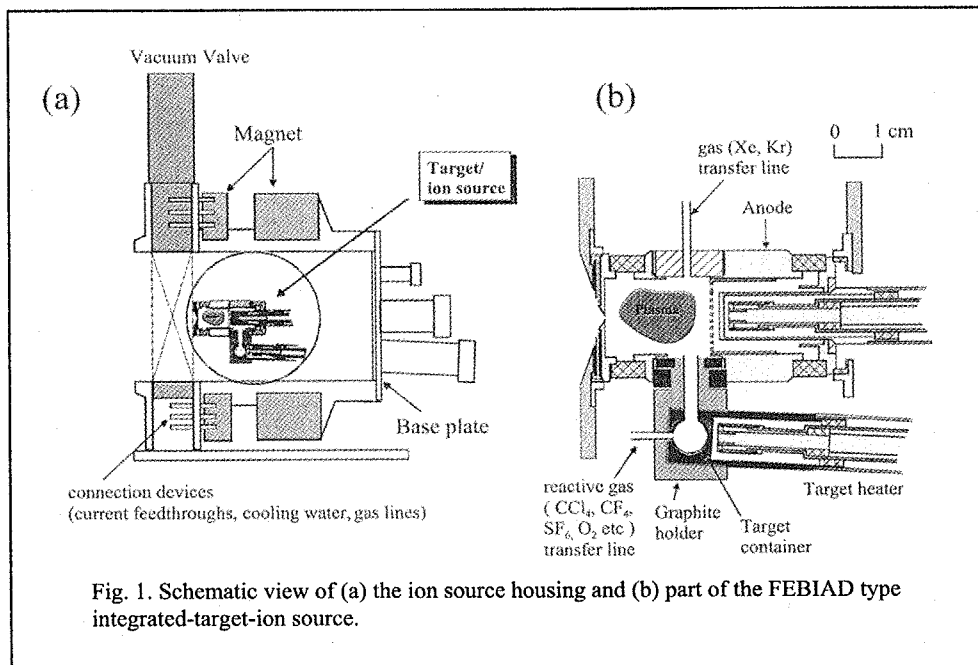


Fig. 1. Schematic view of (a) the ion source housing and (b) part of the FEBIAD type integrated-target-ion source.

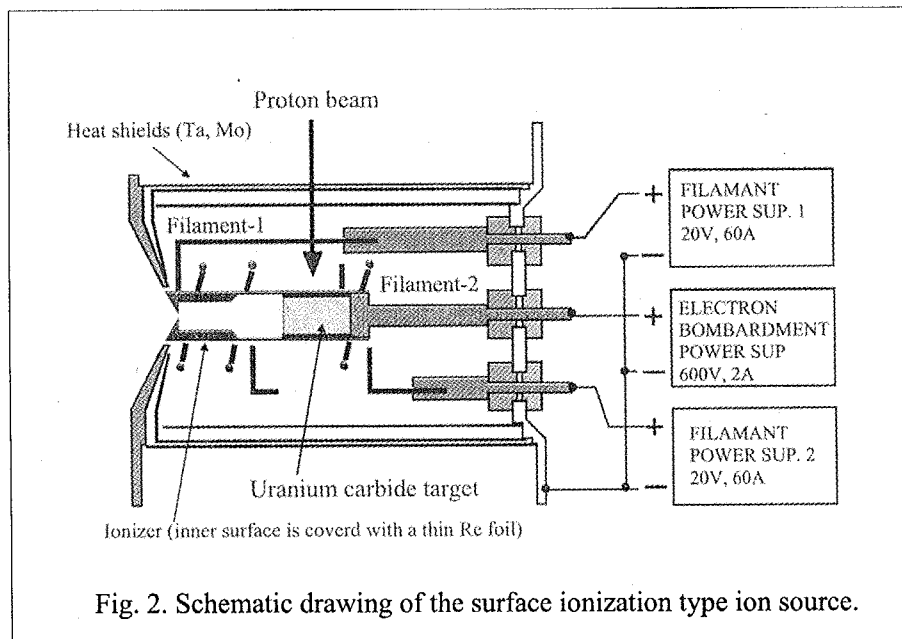


Fig. 2. Schematic drawing of the surface ionization type ion source.



## 2.3 18GHz ECR CHARGE BREEDER

### 18GHz ECR チャージブリーダー

S.C. JEONG<sup>a</sup>, M. OYAIZU<sup>a</sup>, E. TOJYO<sup>a</sup>, H. KAWAKAMI<sup>a</sup>, H. ISHIYAMA<sup>a</sup>,  
H. MIYATAKE<sup>a</sup>, K. ENOMOTO<sup>a</sup>, Y. WATANABE<sup>a</sup>, I. KATAYAMA<sup>a</sup>, T. NOMURA<sup>a</sup>,  
M. MATSUDA<sup>b</sup>, A. OSA<sup>b</sup> and S. ICHIKAWA<sup>b</sup>

a) IPNS-KEK, Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

b) JAERI, Shirakata-Shirane 2-4, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

鄭 淳讚<sup>a</sup>、小柳津 充広<sup>a</sup>、東條 栄喜<sup>a</sup>、川上 宏金<sup>a</sup>、石山 博恒<sup>a</sup>、  
宮武 宇也<sup>a</sup>、榎本 一志<sup>a</sup>、渡辺 裕<sup>a</sup>、片山 一郎<sup>a</sup>、野村 亨<sup>a</sup>、  
松田 誠<sup>b</sup>、長 明彦<sup>b</sup>、市川 進一<sup>b</sup>

a) 高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所

b) 日本原子核研究所・東海研究所 物質科学研究部

### 1. Introduction

The radioactive nuclear beam (RNB) facility, originally constructed at KEK-Tanashi, will be moved to Tandem Accelerator Facility at JAERI-TOKAI under the collaboration between KEK-IPNS and JAERI-TOKAI [1]. In the facility, the neutron-rich fission products of <sup>238</sup>U induced by protons of 30MeV[2] will be accelerated to the energies exceeding 5MeV/A. The accelerated energies depend on their mass to charge ratio (A/q), which should be less than 7. An UC<sub>2</sub>-target of 2.6g is going to be implemented in a target-ion source module of JAERI on-line isotope separator (JAERI-ISOL)[3], presently operating with a surface ionization type or a FEBIAD ion source. Since the ions from the ISOL are singly charged, a charge breeding system is necessary for acceleration. The charge breeder (CB) converts singly charged radioactive ions from the ISOL to more highly charged ions having A/q<7. We made an electron cyclotron resonance (ECR) ion source as the charge breeder for the facility, based on our previous studies [4,5] about the conditions necessary for an ECRCB with high efficiency of charge breeding.

The ECR charge breeder (ECRCB) operating at the microwave frequency of 18GHz has been installed at KEK test bench. The source is currently operating for tests. After summarizing the characteristics of the 18GHz ECRCB for KEK-JAERI RNB facility, some of the test results will be presented in this report.

### 2. 18GHz ECR charge breeder

The cross sectional view of the 18GHz ECR charge breeder is shown in Fig.1. Some of the important components are discussed as follows.

In our previous studies [5], we have focused on the plasma volume and the charge state of the plasma constituent ions necessary for charge breeder with high efficiency, demonstrating that an efficient ECR ion source is well suited to the charge breeder. Energetic electrons, high plasma density and a good ionic confinement are important ingredients for high charge breeding efficiency as well as for the effective production of highly charged ions. For producing ions with A/q=7, for example, many electrons should have energies exceeding about 600eV. Creating this kind of hot electrons with high density in a minimum-B structure is not difficult whenever a magnetic field configuration for the efficient confinement of hot electrons and a high microwave frequency are employed. Following the recent scaling law concerning the magnetic field configuration [6], we determined axial and radial magnetic mirror ratios possible with conventional solenoid coils and permanent magnets;  $R_{axial} = 1.5T / B_{ECR} = 2.3$  and  $R_{radial} = 1.1T / B_{ECR} = 1.7$ , where  $B_{ECR} = 0.64T$  for 18GHz. Both of them are very close to optimum values with this frequency [6]. The measured axial and radial magnetic field configurations are shown in Fig.2, respectively. The axial configuration is realized by two solenoids (solid line in Fig.2). In addition, the value of  $B_{min}$  can be varied by the operation of the correction coil (dotted line in Fig.2). In the figure also shown is the radial hexapole field configuration produced by 24 pieces of permanent magnets.

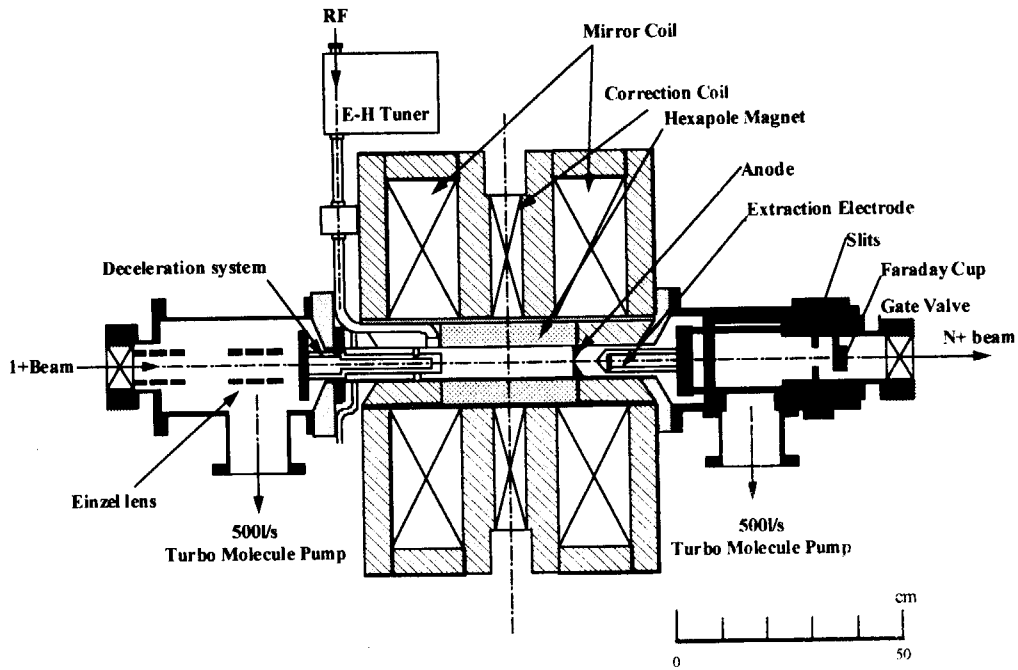


Fig.1 Schematic drawing of the 18GHz ECR Charge Breeder at KEK

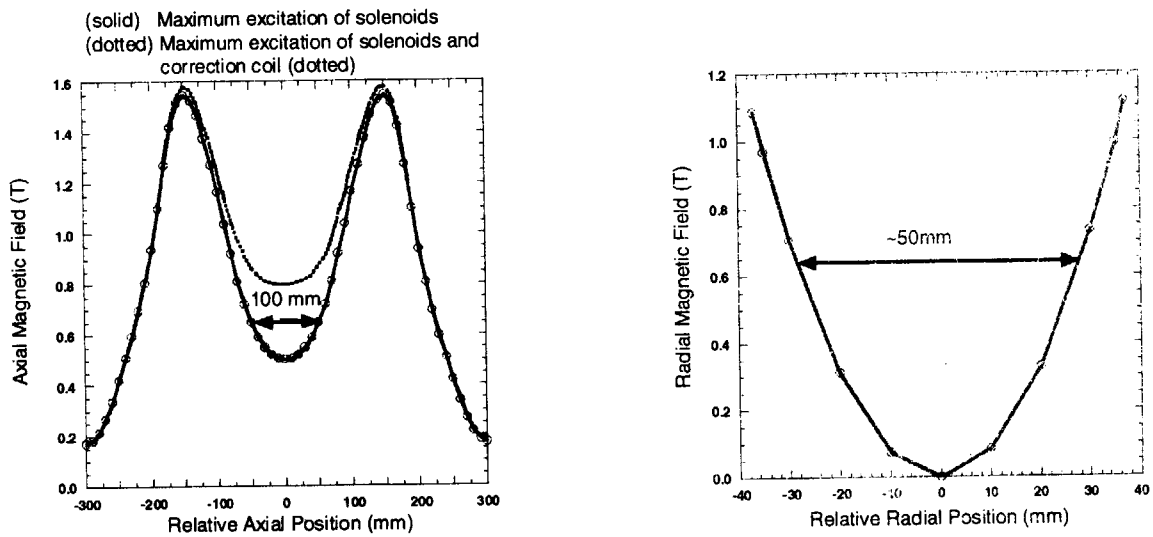


Fig.2 Measured axial and radial magnetic field distributions of the ECR source

Ionic confinement time is closely related to the volume of the plasma chamber of the source; in a large volume the ions can reside in plasma for a long time, so that the ionic confinement time is increased and accordingly highly charged ions can be created. With the help of data comparing the charge state distributions of Ar from sources with different plasma volumes [7], a plasma chamber around 1l appear to be enough for our purpose. Furthermore, the volume determined in this way can accommodate a hot ECR zone with the axial length of 100mm and radial diameter of 50mm, as indicated by arrows in Fig.2. It would be sufficiently large so that the ECR plasma should efficiently capture injected ions, as discussed in Ref. 5.

The deceleration system in Fig.1 is a simplified version of that used in the pilot breeder

[4]. Instead of the multi-step deceleration, two-step deceleration is possible in cooperating with two concentric cylindrical electrodes. The outer cylinder, 40mm in diameter, will be operating as a final stage of deceleration, whereas the inner cylinder, 20mm in diameter, stays on the ground potential. Therefore, the main deceleration will happen between two electrodes and further smooth potential drop exists between the outer cylinder and the plasma chamber. As the result of the comprehensive simulation of the deceleration optics [4], a small potential gap during the final stage of deceleration is favorable for large acceptance in the injection of ions. Because the potential gap should be around 2 kV or less, the outer cylindrical electrode can also be employed for producing more highly charged ions by the conventional bias-probe method. Both of the electrodes are altogether movable axially around the maximal position of the magnetic field for the optimization of the injection under the influence of the field.

Designed in this way, the ECR charge breeder was manufactured and the installation at the test bench of KEK has been recently finished. The source is currently operating for tests and some of the results will be given in the following.

### 3. Charge breeding experiments

Fig.4 shows the test bench used for test experiments. Singly charged (1+) ion beam of 12kV was produced by the 12GHz ECR ion source. After being analyzed by a 45° magnetic separator, the beam was characterized by a double slit located at the focal point of the separator. The emittance of the beam was fixed to about  $50 \pi$  mm mrad, by using the slit.

The continuous beam was injected into the 18GHz ECRCB for further ionization, after being properly shaped and decelerated by the following beam optical system. The optical system for the injection consists of an einzel lens doublet and two deceleration electrodes as discussed in the previous section. The high voltage applied to the charge breeder is slightly lower than 12kV in order to compensate the difference in the plasma potentials of two ECR ion sources. The final energy of 1+ ions at the instant of injection can be tuned to be close to zero, by adjusting the difference in the high voltages actually applied to two sources in an order of 10V according to the operational conditions of two sources. During the present experiment, the outer cylinder of the deceleration system stayed on the same potential as the charge breeder.

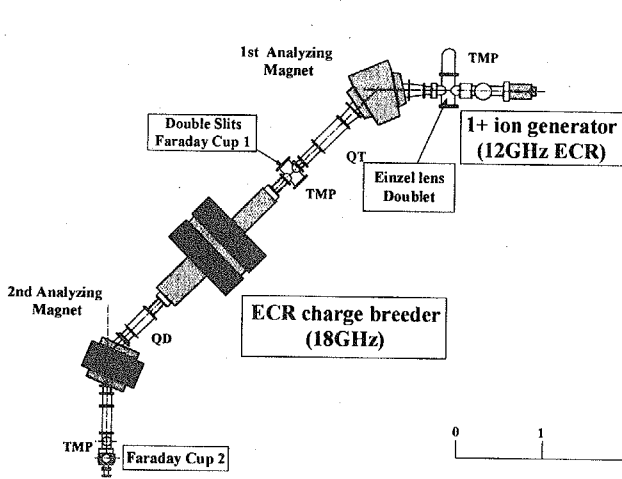


Fig.4 Layout of the test bench at KEK

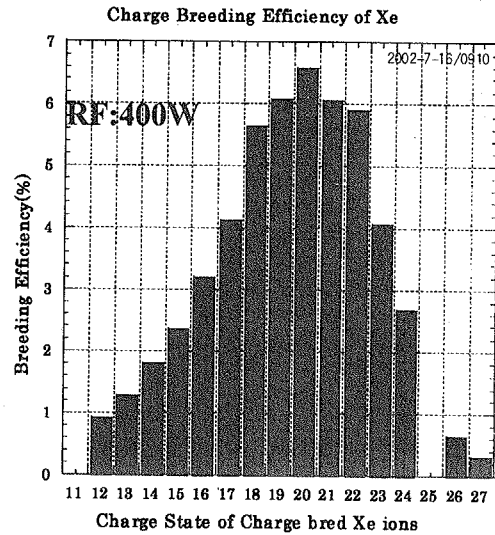


Fig.5 Charge state distribution of charge bred Xe ions

Under an operational condition of the ECRCB adjusted for Xe<sup>18+</sup> before injection, the charge breeding efficiency for Xe<sup>1+</sup> ions was measured. The Xe<sup>1+</sup> ion with an intensity of about 500nA was injected into the ECRCB as discussed above. The ECR plasma consists solely of residual gases, such as O and C ions. The charge-bred Xe ions are extracted again and their charge distribution was measured. In Fig.5 are shown the charge breeding efficiencies for Xe, resulting from the continuous injection of Xe<sup>1+</sup> ions of 500nA. The global



efficiency, sum of specific efficiencies for ions shown in the figure, was about 50%. The maximum observed at  $\text{Xe}^{20+}$  reaches about 6.5%.

#### 4. Summary and outlook

We have made an ECRCB for KEK-JAERI RNB facility. We have discussed the characteristics of the 18GHz ECRCB for KEK-JAERI RNB facility, and shown a result of charge breeding experiments. The charge breeding experiment is undergoing with different kinds of ions. Another challenging problem in the development of the ECRCB for RNB facilities is how to reduce the background components in the ion spectrum, which would be an intolerable problem in such applications. We have already observed about 10nA background in the region of interest, i.e.  $6 < A/q < 7$ , under the present operational condition of the source. Though part of them could be reduced by an improved performance of the beam analyzing system, it would very desirable to reduce such contaminations in the ion source by an improved vacuum, especially, selectively reducing the residual gas components in the source. This idea is under test. The test will be continued by the end of 2003 and then the source be moved to JAERI according to the over-all time schedule of our facility.

#### References

- [1] H. Miyatake et al., Proc. of 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators, TRIUMF, Canada. May 2002, to be published in Nucl. Instrum. Meths. B.
- [2] H. Kawakami, KEK Report 2001-15.
- [3] S. Ichikawa et al., Proc. of 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separator, TRIUMF, Canada. May 2002, to be published in Nucl. Instrm. Meths. B.
- [4] M. Oyaizu et. al., Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 806.
- [5] S.C. Jeong et. al., Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 803.
- [6] D. Hitz et al., Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 509.
- [7] N. Angert et al., Proc. of the 14<sup>th</sup> International Workshop on ECR sources, CERN, Geneva, Switzerland, 1999, p220.



## 2.4 短寿命核ビームを用いた物質科学の研究 Study of Material Science with Short-Lived Nuclear Beams

高エネルギー加速器研究機構 ( KEK )  
片山一郎 ( Ichiro Katayama )

### 1. はじめに

現在原研タンデム施設で短寿命核ビーム装置の建設が進んでいる [1]。我々はこのビームを物質科学のプロブに使用することを提案している。その一つはこの短寿命核を打ち込んだ固体試料の拡散過程の研究である。これについてはタンデム施設で  ${}^8\text{Li}$  ビームを製造し、それを用いたプロトタイプの実験を行っている。またこの関係で古来拡散実験で行われる試料の切り出しの近代版の装置を高エネ機構で開発製作中である。一方核子当たり 1MeV までのエネルギーは 30 年の歴史をもつ傾斜薄膜法ないしグレージング散乱法による核偏極の手段として最適エネルギーであることが知られている。第二のテーマとしてこのためのコンパクトで扱いやすい散乱装置を開発して、核偏極を用いた  $\beta$ -NMR 等の実験に使うことを検討している。研究会ではこの二つのテーマの準備状況を報告した。

### 2. 拡散実験

放射性核種を用いた固体中の拡散実験は半世紀の歴史をもつ。ここで今回提案の短寿命核ビームの利用は以下の点の特徴をもつ。

- 質量数 20 以下の軽元素では適当な寿命の放射性核種が少ないため、これ迄拡散過程の研究への利用は少なかった。しかし測定装置を工夫することにより短寿命核は軽元素についての新しい拡散プロブとして利用できる。
- 短寿命であることから固体に打ち込むとその寿命の時間で放射平衡に達し入射数と同じ数の崩壊数が得られる。すなわち大きな比放射能をもつ。

実験方法としては短寿命核の崩壊形式から二種類の方式が考えられる。その一つは短寿命核が  $\beta$  遅延荷電粒子 (陽子または  $\alpha$  粒子) を放出する場合、もう一つは  $\beta$  線および  $\gamma$  線のみの崩壊の場合である。前者の場合は拡散により短寿命核が移動し、それに伴い発生する荷電粒子の固体中のエネルギー損失量に変化するのでそのエネルギースペクトルおよび時間スペクトルを測定することでその効果を求める。後者の場合、古来行われてきた拡散した試料をスライス状に切り出してそれぞれの放射能強度を測定する。ただし短寿命核であるため迅速性が要求され、オンラインでこの一連の操作ができることが必要となる。初めにこの (a) の点から従来放射性核種の使用が行われていない Li と F について実験を提案している。 ${}^8\text{Li}$  については現在タンデム施設の大型装置を使用することでプロトタイプの実験が可能である。平成 11 年より磁気スペクトログラフ ENMA を用いて  ${}^8\text{Li}$  の LiAl および  $\text{LiCoO}_2$  中の拡散過程の実験を行っている\*)。LiCoO<sub>2</sub> はリチウムイオン電池の陽極に使用されてる電極材料であるが、従来の実験法 (インピーダンス法等) では測定された

\*) 共同研究者、建設者：高エネ機構；鄭淳讚、川上宏金、石山博恒、宮武宇也、東條栄喜、小柳津充広、榎本一志、原研；左高正雄、岡安悟、須貝宏行、岩瀬彰宏、市川進一、西尾勝久、日本アドバンスト；杉山康治、物質・材料機構；高田和典、渡辺遵、直森大；矢萩正人、橋本恭能

拡散定数に大きな違いが生じており、この点において新しい手段によるデータは意義があるものと考えている。まずは現在まで ENMA を用いて行った実験結果を示す。

### 3. $^8\text{Li}$ ビームのプロトタイプ実験

$^8\text{Li}$  ( $T_{1/2}=0.8$  秒) は Li 同位体の中で  $\beta$  遅延  $\alpha$  粒子を放出する特徴ある原子核である。すなわち  $\beta$  崩壊で  $^8\text{Be}$  の第一励起状態  $2^+$  に到達し、そこから 2 つの  $\alpha$  に崩壊する。幅は粒子放出の自然幅が 1MeV 近くあるため 1 個の  $\alpha$  粒子は中心エネルギーが 1.2MeV、幅は 600keV と広がっている。当初この大きな自然幅のため  $\alpha$  エネルギースペクトルの変化から拡散距離を求める難しさが懸念されたが、研究グループの鄭の解析から高エネルギー部の積分値の測定強度変化から拡散効果を定量化できることが示された [2,3]。 $^8\text{Li}$  は ENMA の標的として  $^9\text{Be}$  を用い、 $^7\text{Li}$  のタンデムビームにより得た (図 1)。ENMA は高分解能磁気スペクトログラフであるが各 4 重極電磁石が独立電源を有しているため収束面上での運動量分散を下げることが可能なことを利用した。しかし分散を下げることに伴ない縦倍率が大きくなり収束面上に置いた 8 mm  $\Phi$  の拡散試料上の  $^8\text{Li}$  量が減少することがあり、実際は試料と同一面積を持つ SSD により、最も収量の上がる ENMA の条件を求めた。その量は ENMA 標的に 300enA の  $^7\text{Li}^{3+}$  が照射されるとき約 300cps であった。

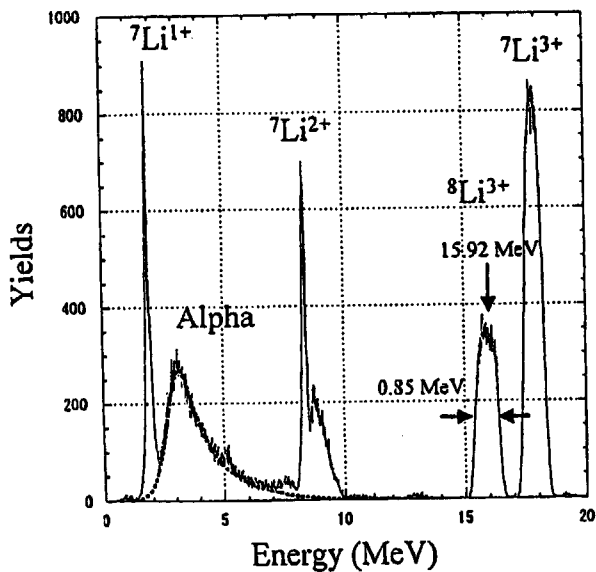


図 1. 磁気スペクトログラフ ENMA による  $^9\text{Be}$  ( $^7\text{Li}$ ,  $^8\text{Li}$ )  $^8\text{Be}$  の粒子スペクトル。

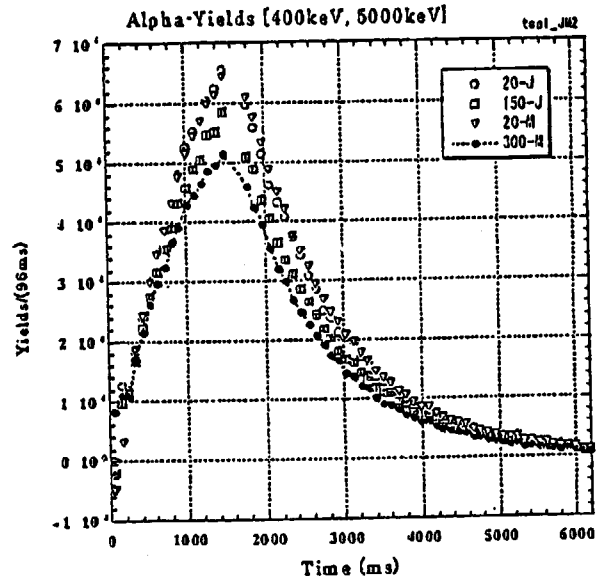


図 2. LiAl の温度をパラメーターとした  $\alpha$  生成量 (0.4MeV 以上を積分) の時間スペクトル。

このビームを試料の約 50cm 上流に置いた Al デグレーダーでエネルギーを調整し、試料にインプラントし、そこからビーム入射と反対方向に出るアニュラー SSD で受け、それが最大となるようにその位置(厚さ)を調整した。またさらに上流に菱形のビームストッパーを 90 度往復回転させてビームを on/off する。アニュラー SSD のスペクトルは単調に指数関数状にエネルギーと共に減衰するもので低エネルギー部には  $\beta$  線が混入している。 $\beta$  線の寄与は試料に代えて置いた SSD に十分深く打ち込んだときのアルファ線とアニュラー SSD の  $\beta$  線との同時計数により判断できる。この結果から  $\beta$  線の影響の少ない 500keV 以上を積分して  $\alpha$  線強度とした。図 2 は 2002 年 5 月の測定結果を示す。縦軸は上記の  $\alpha$  線測定強度、横軸は時間である。1.5 秒の  $^8\text{Li}$  打ち込み、4.5 秒ビームオフによる 6 秒間の

時間サイクルで測定した。図2の3本のカーブは試料の常温、150℃、300℃、に対応する。試料として原研、青森大で共同研究してきた LiAl を使用した [4]。LiAl 中で Li は格子中に生じた空孔を介して拡散することが知られており、NMR により拡散定数の温度依存性が測定されている。この結果との比較検討と未測定温度の新データを得るのが目標である。同数の  $^6\text{Li}$  を打ち込んでいるが拡散効果により、時間スペクトルに変化が生じている。この結果から拡散定数を求める解析を進めている。この検討から明らかになったことに試料表面の平滑度の不十分さがあり、次回の改善点となっている。最近許認可が下り  $^7\text{Li}$  ビームが使用可能になった RMS で天体核のテストが行われ、 $^6\text{Li}$  の収量が ENMA に比して 5-10 倍強力であることが明らかになった。次ぎの実験は試料表面の平滑度を改善して RMS コースで実験を行うことを予定している。

#### 4. 開発中の拡散実験装置を用いた $^{20}\text{F}$ , $^{18}\text{F}$ の $\text{CaF}_2$ 中の自己拡散の研究

現在つくば高エネ機構で拡散実験装置を制作中である。古典的なサンプル切り出し（セクショニング）をオンラインで行うことができることが従来法と違うだけで、汎用性を持った装置である。 $\text{CaF}_2$ （蛍石）は超イオン伝導体として知られている [5]。すなわち電場がかかると F イオンが格子間をジャンプして移動することで電気伝導性を示す。その強さは 600C で  $3 \times 10^6 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$  程であり、これは  $10^{11} \text{cm}^2/\text{s}$  程度の拡散定数に相当する。この拡散では Ca は格子点から動かず、F はぎっしり詰まった単純立体格子の中で一つ F が何らの原因でジャンプすると近くの F イオンがその空いた F-格子を埋めるように移動し、この繰り返しによって F は移動する [6]。電場がかかってないときは置かれた温度によって上記のジャンプが生じ、これが拡散を引き起こす。従来は電気伝導率の測定からキャリアとしての F イオンの動きが求められてきた。また超イオン伝導体のキャリアイオンについての核磁気共鳴(NMR)を求め、ホッピング周波数を求め拡散定数を求めることも行われている。今回の F 自身をトレーサーとしてその拡散効果を直接測定することから超イオン伝導体に関する理論的モデル、及び他の実験手法による拡散定数測定結果と比較検討することができ、 $\text{CaF}_2$  のさらに精緻な理解につながることを目指す。

この方法で測れる拡散定数として  $1 \times 10^8 \text{cm}^2/\text{s}$  が一つの目安であるが、この値は 1000K 近くに対応する。この点で当初の実験としては実験上の容易さから拡散定数の大きい他の超イオン伝導体が適当かもしれない。その候補の一つは  $\beta\text{-PbF}_2$  である。600K で  $\text{CaF}_2$  の  $10^6$  倍の伝導率を示し、陽イオン側の伝導の寄与もあると解釈されているので [7]、この物質について F 拡散の温度依存性を測定するのがおもしろいかもしれない。

#### 5. グレージング散乱・傾斜薄膜による偏極ビーム生成

重イオンを固体薄膜を斜めに通過させて原子を偏極させることは 1980 年代に大いに研究された。その結果は文献 [8] にまとめられている。ここで興味深い結果は斜めの角度（面の法線とビームのなす角度を  $\theta$  する）が増えるに従い偏極がおおよそ  $\theta^3$  に比例することである。すなわちほぼ平行に近い角度で薄膜を通過させることができると大きな原子偏極が期待できる。奇核の短寿命核の場合、この原子偏極は超微細相互作用を通じて原子偏極に振動的に移行する。この手法で短寿命核を偏極させることできれば、従来の核反応の反跳打ち込みに比べてビーム強度を飛躍的に大きくできることから。強力な物質科学のプロープにすることが期待できる。そこで関係者が集まり東北大のイオンガイドビームを用いた偏極ビーム開発を始めている\*\*)。上記の文献 [8] によれば原子偏極は研磨した固体表面のグレージング散乱でも実現することが示されている。ISOL ビームではそのエ

エネルギーの低さから傾斜薄膜の方法は困難でありこの点でグレージング散乱を利用する。一方タンデムでの短寿命核ビーム実験では傾斜薄膜が有効であり、この二つの手法について開発していく。

今回蜂の巣構造のグレージング散乱体を製作した。Ni の研磨面を積層にすることで従来 10cm から 20cm 長の研磨面を、1cm に短縮した。この構造に伴いグレージング散乱(散乱強度は 1%程度となる)がより効率良く行われることはないが、ビーム調整が容易となり実効的にエミッタンスの大きなビームを扱えることになると期待される。この蜂の巣散乱体をビームに対して 0.1 度の精度で調整できる真空中のメカを製作した。短寿命核ビームの場合の傾斜薄膜法については一つの目安として  $1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  厚の 10mm 幅 100mm 長の炭素膜を実現することであるが、その製作の困難さとその取り扱いの難しさを考えこれも積層にすることにす。すなわち 100mm を 20mm 単位に分割し、5つの膜をすだれ状に並べる。このときの難しさは膜の端面加工(ビーム蓄積リングの内部標的技術として開発された)で、できたとしてもビーム照射に伴う変形も懸念されるが厚さの無視できる枠が使用できればこうした配置が可能となる。今回の研究会を機会にその製作法のテストを行ってみた。  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  の炭素膜端をガスカウンター用の直径  $10 \mu\text{m}$  ワイヤで固定することを試み成功した。  $1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  については今後の取り組みであるが推進していく。

#### References

1. H. Miyatake et al, To be published In Nucl. Instr. Meth.
2. S.C.Jeong et al, 'Simulation Study on the Measurement of Diffusion Coefficient in Solid Materials by Short-Lived Radiotracer Beams' (2002, Preprint)
3. S.C.Jeong et al, 'Simulation of radiotracer method for diffusion studies using short-lived radioactive nuclear beams' Contribution paper to 20th ICACS (2003, India)
4. H. Sugai et al, Phys. Rev. B52 (1995) 4050.
5. 小藤吉郎、日本結晶学会誌 26 (1984)122.
6. Y.Kaneko and A. Ueda, Jour. Phys. Soc. Jpn. 57 (1988) 3064.
7. 工藤、笛木著 "固体アイオニクス" (講談社)
8. G.Goldring, M. Haas and E. Dafni, Hyp. Interac.33 (1987) 19.

---

\*\*) 共同研究者：高工ネ機構；鄭淳讚、川上宏金、渡辺裕、宮武宇也、  
京大原子炉；谷垣実、東北大サイクロRIセンター；篠塚勉



## 2.5 不安定核ビームを用いた核構造研究

## Nuclear Structure Study by Using Unstable Nuclear Beam

清水 良文

九州大学理学研究院物理学部門

Y. R. SHIMIZU

*Department of Physics, Kyushu University, Fukuoka 812, Japan***Abstract**

In this talk, the following two topics related to physics of unstable nuclei are discussed: change of shell structure or magic number in very neutron rich nuclei, and “phase” transition/coexistence expected in nuclear chart. In the latter topic, the well-known transition between spherical and prolate or oblate shape, the transition to large and/or triaxial deformation, as well as expected existence of exotic shapes like tetrahedral one are exemplified. The interesting phenomena in combination with high-frequency rotation are also mentioned.

## §はじめに

最近進展の著しい不安定核ビームを用いた原子核研究は、ハローやスキンといった新しい核物質の存在形態の知見を与えると同時に、超重核探査など核図表 ( $(N, Z)$ -平面) 上で未知の核種へ原子核物理学の研究領域を広げる、という意味からも興味深い。また、ビッグバン時や星の中での元素合成など宇宙物理学との境界領域の研究にとっても大変重要である。このように不安定核の物理に関係する範囲は広く、そのすべてを概観するのはとても私の手に負えるものではない。幸いにして、この研究会では他に適当な講演者の方がおられるので、本講演では、原子核構造の理論的研究の立場から、1) 不安定核で見られる殻構造の変化、2)  $(N, Z)$ -平面上で期待される種々の相転移現象、の2つの話題に限って議論した。最近のより詳しいこの分野の動向については、例えば Refs. 13, 14) を御覧ください。なお、文献はオリジナルなものよりなるべく新しいものを載せました。

## § 殻構造、独立粒子軌道の変化 — 魔法の数の消滅・生成

最近明らかになってきたことのうちで特に興味深いことの一つは、中性子数と陽子数のアンバランスな不安定核では、魔法の数といえども変更を受けやすいことである。良く知られているように、中性子数 ( $N$ ) または陽子数 ( $Z$ ) が  $N, Z = 2, 8, 20, 50, 82, 126$  の原子核は特に安定であり、この数を魔法数という。これは核内核子は近似的に独立粒子運動を行っており、その一粒子エネルギー準位が一樣でなく、ちょうど魔法の数だけ核子を詰めると次の準位との間に特に大きなエネルギー的ギャップが存在するために安定化する、ということを示している。これは原子中の電子の運動と同様に魔法の数のところでシェルが閉じることに対応し、殻構造 (シェル構造) を表している。この殻構造を規定する一核子のエネルギー準位は、核子間の有効相互作用の結果として自己無撞着に作られた平均場によって決まっているが、(対相関や変形といった残留相互作用の効果を除いて) 安定核ではほぼ核種に依らずに決まった準位を取ると考えられてきた。しかし、最近の不安定核の実験データにより、例えば、 $Z \approx 8$  の原子核では  $N = 20$  の魔法の数は破れ、その代わりに  $N = 16$  がより安定な新しい魔法の数になっていることがわかってきた<sup>1,2)</sup>。

この魔法の数の変化を引き起こすメカニズムとしては、不安定核に特徴的なハローやスキンといった広がった密度分布によるという考え方<sup>1)</sup>の他に、平均場を作る核子間有効相互作用として中性子・陽子間のスピン交換力が重要であり、中性子数と陽子数がアンバラ

ンスなために平均場の性質自身が安定核から変更を受け、それに伴って一粒子準位が大きく変化することによるという考え方<sup>3)</sup>が提案されている。前者は不安定核に特有の効果であるが、後者は程度の差はあれ安定核でもその効果は見られるはずである。一粒子エネルギー準位を直接的に観測するのは難しいが、それは原子核の集団運動など核構造にとって極めて重要な役割を果たす。これまでも、例えば、オブレート型の高スピンアイソマーのエネルギー準位の系統的研究によって、核子数の変化によって徐々に一粒子準位が変化しているのではないかという分析<sup>4)</sup>が行なわれている。これまでは、一粒子準位は魔法の数の近傍の球形核で決められたものを用い、核構造の変化はすべて残留相互作用に押し込めて記述されることが多かったが、そのような方法で定量的な理解が困難であった問題に対しても、一粒子準位の変化を自己無撞着に採り入れることが本質的役割を果たすかもしれない。そのためには、不安定核での魔法の数の変化と安定核の基本的性質を同時に記述できる有効相互作用を定めることが重要であろう。このように、不安定核で特に明確に現れる効果を、安定核の核構造の研究にフィードバックすることも、これからの研究方向として是非とも検討すべきことであると思われる。

### § 核図表上で期待される種々の相転移・異相共存現象

原子核構造研究の重要なテーマの一つは、有限量子系としての原子核の示す相転移や異相共存現象のメカニズムを明らかにすることである。ここで、「相」というのは固有状態の内部構造を特徴付けるものとして使っている。原子核のような有限系では相転移はゆるやかに起こるが、内部構造の違いを反映した集団運動や独立粒子運動による励起スペクトルや電磁遷移の特徴が質的に変化するために、相の違いを区別できる。その古典的な例は、集団運動として振動励起状態を示す球形核から、回転励起状態を示す変形核への相転移である。核子数やアイソスピン(中性子数と陽子数の差)、または、角運動量などを変化させた時に見られる、このような相転移だけでなく、同じエネルギー領域に相異なる相が共存する現象も普遍的に見られる。例えば、Sn 原子核 ( $Z = 50$ ) は基底状態近傍では典型的な球形核であるが、中性子数  $N \approx 60 - 70$  のアイソトープでは励起エネルギー 2MeV 程度に回転バンドが見られ、プロレート型変形励起状態が共存することがわかっている。最近では、中性子数の少ない  $^{186}\text{Pb}$  で球形・オブレート型変形・プロレート型の 3 種類の変形状態が共存しているのではないかと、との報告も出されている<sup>5)</sup>。

このような原子核の形の自由度に対する相転移・異相共存現象は、先に述べた殻構造とも密接に関係しており、不安定核ビームを用いて核図表のより広範囲な領域の核が探査できるようになると、より一層そのメカニズムの理解が進むと期待される。特に最近では、例えばこの原子核研究所のタンデム加速器を利用したクーロン励起実験<sup>6)</sup>に見られるように、複数の状態間の複雑な電磁遷移を分析することによって、それぞれの集団状態の電磁気モーメントを引き出し、原子核の形状をより精密に議論することが可能になるなど、実験的手法の進歩も著しい。また、比較的良く知られた基底状態近傍での四重極型の軸対称変形した状態(プロレート型・オブレート型)や、パリティを破った軸対称の八重極変形状態(洋梨型)の他にも、高速回転する原子核では、非軸対称(3軸非対称)に変形した状態や巨大変形状態(長軸と短軸に比がほぼ 2:1)が系統的に観測されてきており、「形状相」の種類も多様になってきている。この他にも、まだ観測されていないが理論的に予言されている興味深いエクゾチックな形としては、非軸対称な八重極変形状態がある<sup>7)</sup>。通常、八重極変形は四重極変形を伴うことが多く、例えば巨大変形状態の場合にはバナナ型のような変形状態、または、振動状態が考えられる。特に最近指摘されているのは、四重極変形を伴わないほぼ純粋な八重極変形状態の可能性であり、この場合は、三角形型や正四面体型(tetrahedral shape)などの形を持った状態が予言されている。特に、tetrahedral

shape に対しては空間の対称性が良く殻効果エネルギーを稼ぐために、対応する中性子数・陽子数を持つ原子核ではかなり安定な状態として存在し得るのではないかと予想されており<sup>8)</sup>、そのような状態の発見は大変興味深い。

角運動量を持ち込んで高速回転する原子核を考えると、変形の主軸の他に回転軸(角運動量ベクトルの方向)が新しい自由度として存在し、より一層多様な相転移・異相共存現象が現れる(例えば、Ref.9)参照)。実際、例えば同じプロレート型に変形していても、回転軸が変形の対称軸に平行な場合は集団的回転運動は存在せず、回転軸が対称軸に垂直な場合と全く異なった励起スペクトルを示し、回転の効果まで含めると異なる相にあると考えられる。このように回転軸が異なった状態間の遷移は近似的に禁止されるが、最近この禁止の度合がこれまで考えられていたよりずっと弱く、そのような遷移が実際に観測されて「K-アイソマーの崩壊現象」として興味を持たれている<sup>10)</sup>。これも一種の相転移・異相共存現象である。さらに、高速回転状態の中で最もエネルギーの低い状態(イラスト状態という)は、回転軸が変形の主軸に一致するような回転様式を取ると考えられるが、最近になって、回転軸が変形主軸から傾いた状態がイラスト状態近傍に普遍的に存在することがわかってきた<sup>9)</sup>。この時、特に非軸対称性な変形を持つ場合に興味深い運動が起こり得る。その一つは剛体の回転運動のアナロジーから物体固定系で角運動量ベクトルが複雑に運動する首振り運動(wobbling motion)であり、最近、それに対応すると考えられる回転バンドが非軸対称大変形状状態の励起状態として観測されている<sup>11)</sup>。また、3軸非対称の場合は、回転軸が変形主軸から作られるどの平面内にもないような場合が起こり得るが、その時には右手系・左手系を区別するカイラル対称性が破れ、それにとまって特徴的な回転スペクトルが現れる。これに対応すると思われる回転バンド(カイラルバンド)も、最近になって観測されつつある<sup>12)</sup>。このように、角運動量の軸を加えることによってより一層豊かになる、核図表上での原子核が示す多様な相を調べることが、核構造研究にとって極めて重要であることを指摘してこの話を終りにしたい。

## References

- 1) A. Ozawa, T. Kobayashi, T. Suzuki, K. Yoshida, and I. Tanihata, Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 5493.
- 2) P. D. Cottle and K. W. Kemper, Phys. Rev. **C66** (2002), 061301.
- 3) T. Otsuka, R. Fujimoto, Y. Utsuno, B. A. Brown, M. Honma, and T. Mizusaki, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), 083502.
- 4) A. Odahara et al., Nucl. Phys. **A620** (1997), 363.
- 5) A. N. Andreyev et al., Nature **405** (2000), 25.
- 6) Y. Toh et al., Euro. Phys. J. **A9** (2000), 353.
- 7) M. Yamagami, K. Matsuyanagi, and M. Matsuo, Nucl. Phys. **A693** (2001), 579.
- 8) J. Dudek, A. Goźdź, N. Schunck, and M. Miśkiewicz, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 252502.
- 9) S. Frauendorf, Rev. Mod. Phys. **73** (2001), 463.
- 10) T. Shizuma, Y. R. Shimizu, and T. Hayakawa, J. Nucl. Sci. Tech. **39** (2002), 1137.
- 11) D. R. Jensen et al., Nucl. Phys. **A703** (2002), 3.
- 12) K. Starosta et al., Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 971.
- 13) Proceedings of International Conference on *Frontiers of Nuclear Structure* (FN2002), 29 July – 2 August, 2002, Berkeley.
- 14) Proceedings of International Symposium *Frontiers of Collective Motions* (CM2002), 6-9 November, 2002, Aizu, Japan.





## 2.6 短寿命核ビームによる星の中での重元素合成過程 Study of astrophysical heavy element synthesis with RNB

高エネルギー加速器研究機構(KEK)  
宮武宇也(Hiroari Miyatake)

### 1. はじめに

天体における重元素合成過程の研究は、星の誕生からその消滅に至るメカニズムを明らかにする上で大きなインパクトを与えてきた。特に、近年の観測手段の飛躍的発展と、短寿命核ビーム(RNB)による実験方法の拡大、大規模な計算機シミュレーションの実現等により、定量的な研究が可能な段階に入ったといえる。

我々の研究グループ\*)では、低エネルギーRNB を供給する再加速型の短寿命核分離加速実験装置を、原研東海研と共同して 2001 年より 3 年計画で建設中である[1]。この装置による本格的な天体核研究の展開に先立ち、簡便な方法による中強度 RNB の生成とそれによる重元素合成過程の研究を始めた[2,3]。

### 2. 目的

鉄より重い元素の主な生成過程には、安定線近傍を反応速度の遅い中性子捕獲反応によって進む s-過程、比較的高温の天体環境において陽子捕獲反応により重元素生成を行う p-過程、高温でかつ中性子数密度の高い環境下で早い中性子捕獲反応により進む r-過程等がある。これらの代表的生成過程の中でも、r-過程は未知の中性子ドリフトライン近傍核種が関連する過程であるため、中性子数密度、温度、継続時間等の天体パラメータの精度が低い。候補となる天体を絞りきれていないのが現状であった。

最近、世代の古い星における重元素分布が、太陽系のそれと良く一致しているという観測報告がなされた[4]。これは、重元素合成過程が、それが起る以前の元素分布環境に依存していないことを示唆している。そこで、超新星爆発時あるいは中性子星の衝突時、宇宙の初期などに、軽い元素から一気に重い元素までを生成するシナリオの有効性が精力的に調べられつつある。

超新星爆発に伴う r-過程[5]では、爆発直後の( $\alpha, n$ )反応によって、r-過程の種核および中性子の供給がされる。定量的な議論を進めるためには、( $\alpha, n$ )反応断面積の正確な推定が必要となる。ここで対象とする断面積は、中性子過剰な短寿命核が関与するものであり、ほとんどが未知であることから、模型による計算値が用いられている。しかし、準位密度の低い軽い中性子過剰核においては、模型の適用に限界があり、実験的に断面積を測定することが必要である。そこで、我々のグループでは、軽い中性子過剰核、特に質量数が 6 から 20 程度までの  $T_{1/2}=2$  核に対する ( $\alpha, n$ )反応断面積の系統的測定を開始した。

### 3. 実験装置

測定対象は、天体の環境温度にして  $10^9$  K 程度でのガモフピーク位置の周辺、すなわち 100 keV から数 MeV までの反応断面積および、共鳴準位に対する励起エネルギー、 $\Gamma_w, \Gamma_n$  である。短寿命核ビームによる実験のため、ビーム強度には制限がある。そのため、測定を成功させるには、(1) 高効率の検出システムが必須となる。また、S/N 比の高いデータを得るために、(2) 純度の高い RNB 生成が必要である。

上記の条件を満たすものとして、(1) ほぼ 100%の検出効率が期待できるガス検出器(多重比跡検出型比例計数検出器; MSTPC)と大立体角を覆う中性子飛行検出器、(2) 核子移行反応による短寿命核生成と大口径反跳核分析器によるバックグランド

\*)この研究は以下の方々との共同研究である。

石山博恒、鄭淳謙、渡辺裕、吉川宣治、田中雅彦、淵好秀、松山芳孝、片山一郎、川上宏金、野村亨(KEK)、橋本尚志、石川智子、川村隆史(東京理科大)、池添博、光岡真一、市川進一、西尾勝久、松田誠(JAERI)、福田共和(大阪電通大)、下田正、古川武、出水秀明、矢野博昭、八木まゆ(大阪大学)、溝井浩(RIKEN)、

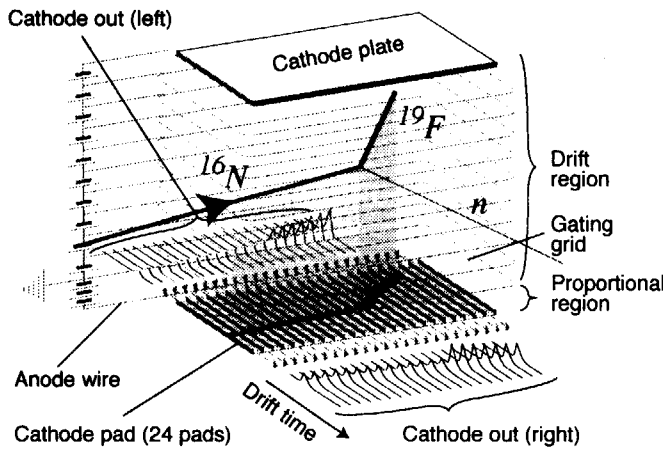


図1 多重飛跡検出型比例計数検出器(MSTPC)

除去、という実験方法を考えた。以下に、それぞれのパートについての説明を行う。

3-a MSTPC(Multiple-Sampling and Tracking Proportional Chamber)

MSTPCは、低エネルギーRNBによる核反応測定装置として開発されたもの[6]で、ドリフトチェンバーと多数の二次元比例計数管(パッド)で構成されている(図1)。(α,n)反応断面積の測定では、検出器ガスを標的核のHeとすることで、ほぼ100%の検出効率を実現する。この検出器では、ドリフト時間とパッドからの比例増幅出力の検出により、

検出器内部を通過する複数の荷電粒子の飛跡とパッド単位のエネルギー損失が個々に測定可能である。

今回の研究では、従来用いてきた入射ビーム強度よりも2~3桁高い $10^{4-5}$ ppsでのMSTPCの使用となる。そこで、ビーム強度に対する出力波高の変動を調べたところ、数10%にも及ぶ大きな変動を観測した。検討の結果この変動には二種類の原因があることが分かった。一つはパッド周辺に露出した絶縁材のチャージアップに起因するドリフト電場の歪みによる変動、他の一つはパッドで増幅された電荷に起因する空間電荷増大に伴うガス増幅度の減少である。前者は露出部分を金属材料で覆うことで解決した。後者については、ゲート機能を持つグリッドを導入し、パッドに入るドリフト電子の量を制限する事で解決した[7]。

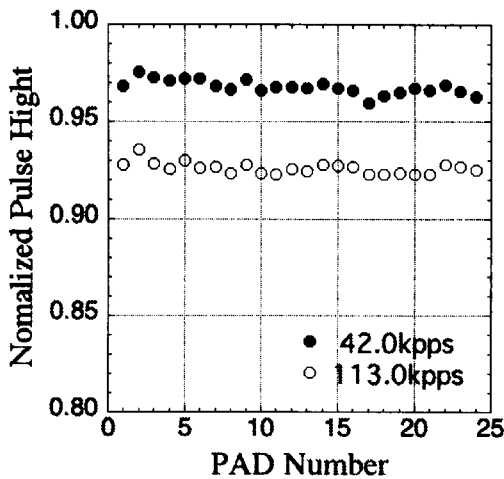


図2 PAD出力の<sup>7</sup>Li入射強度依存性  
トリガーレート 20 events/s に固定し入射強度を 42kpps (●)、113kpps (○)とした時の波高値の相対変化率を示している。入射強度 2kpps, トリガーレート 10 events/s での各出力波高を 1 と規格化している。

ゲーティンググリッドは、異なる電位を交互に印可できる平行ワイヤからなっており、通常はドリフト電子をグリッドで吸収するような電場勾配を形成している。実験上必要となるトリガーイベントが発生した時のみ、電位をパルス的に変化させて、ドリフトして来た電子の吸収をやめてそのまま通過させ、パッドでの電荷増幅を可能にする。

ゲーティンググリッドの有効性を調べるため、トリガーイベントの発生率を典型的な実験時の値とした時の入射ビーム強度による各パッドの出力波高変動を調べた(図2)。これから分かるように、 $4 \times 10^4$ ppsの<sup>7</sup>Liビームの入射においても、波高変動は5%以下に抑えられており、本研究に十分な性能を持っていることが示された。

3-b RNB 生成

逆運動学を利用して核子移行反応を起こさせると、生成された短寿命核は比較的エネルギーの揃った条件で前方に集中して放出される。原研反跳核分析器(JAERI-RMS)は、前方放出された核反応生成物をその質量-電荷比(A/q)で分離し、ビーム状に収束さ

せる。エネルギーおよび角度アクセプタンスが大きい JAERI-RMS の利用により、効率の良い分離収集システムが実現できた。これまでに、 $^{16}\text{N}(T_{1/2}=7.13\text{s})$ ,  $^8\text{Li}(T_{1/2}=0.84\text{s})$ ,  $^{12}\text{B}(T_{1/2}=0.02\text{s})$ の生成と JAERI-RMS による分離に成功した[2]。表 1 に今後使用を予定している RNB も含めて、本研究に用いる短寿命核種をまとめた( $^8\text{Li}$ ,  $^{12}\text{B}$ ,  $^{16}\text{N}$  は実験値)。

生成に用いる反応系において、入射核種の原子番号を変化させる反応の方が変化させないものに比べ、比較的高純度の RNB が得られている事が分かる。これは、原子番号が変わることにより生成標的中での RNB のエネルギー損失が大きく変化し、電場による分離が良くなっているためであると考えられる。

なお、今回得られた  $^{16}\text{N}$  ビームには  $5.3\mu\text{s}$  の寿命を持つアイソマー状態( $J^\pi=0$ )が含まれている。この状態からの  $120\text{ keV}\gamma$ -線の強度測定を行い、アイソマー比  $35(1)\%$  のビームであることを確認した。

表 1 核子移行反応による RNB 生成

RNB	Production Reaction	E [MeV]	Target	RNB Yield [pps/100pnA]	Contamination [pps]
$^6\text{He}$	$d(^7\text{Li}, ^6\text{He})^3\text{He}$	10	$\text{D}_2$ p=1atm/5cm	$3.4 \times 10^3$	small
$^8\text{Li}$	$^9\text{Be}(^7\text{Li}, ^8\text{Li})$	14.6	$^9\text{Be}$ 42 $\mu\text{m}$	$5.1 \times 10^3$	$^6\text{He}, \text{He}/\text{Li} \leq 1\%$
$^{10}\text{Be}$	$\alpha(^7\text{Li}, ^{10}\text{Be})\text{p}$	18	$\text{He}$ p=1atm/5cm	$1.2 \times 10^3$	small
$^{12}\text{B}$	$d(^{11}\text{B}, ^{12}\text{B})\text{p}$	24	$\text{D}_2$ p=1atm/5cm	$3.5 \times 10^4$	$^{11}\text{B}$ $1 \times 10^4$ pps
$^{16}\text{N}$	$d(^{18}\text{O}, ^{16}\text{N})\alpha$	32	$\text{D}_2$ p=1atm/5cm	$9.4 \times 10^3$	$^{18}\text{O}, \text{O}/\text{N}=1.5\%$
$^{20}\text{F}$	$d(^{22}\text{Ne}, ^{20}\text{F})\alpha$	41	$\text{D}_2$ p=1atm/5cm	$6.8 \times 10^3$	small

4. 解析と実験結果

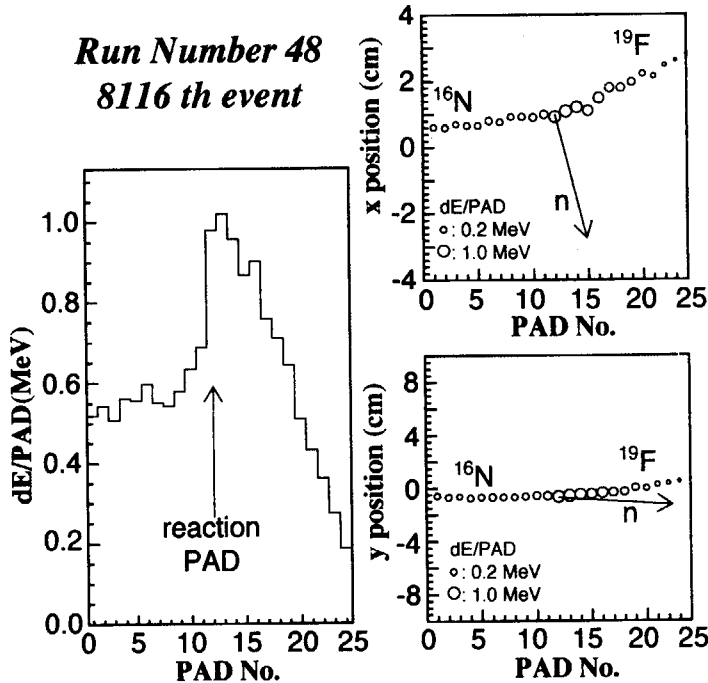


図 3  $^{16}\text{N}(\alpha,n)$  イベントの例

左の図が、各パッドごとのエネルギー損失を示している。反応が起きたところでエネルギー損失のパターンが大きく変化している。右上の図がパッドの二次元情報から得られた飛跡で右下の図がドリフト時間情報から得られた飛跡である。それぞれの図に中性子が検出された方向を矢印で示している。

現在までに  $^{16}\text{N}(\alpha,n)$ ,  $^{16}\text{N}(p,n)$ ,  $^8\text{Li}(\alpha,n)$  反応断面積の測定を行い、 $^{16}\text{N}(\alpha,n)$  についてはほぼ解析を終了した[3,8]。 $^{16}\text{N}(p,n)$ ,  $^8\text{Li}(\alpha,n)$  は解析中である。

$^{16}\text{N}(\alpha,n)$  の解析においては、バックグラウンドとなるイベントを除去し、反応系の同定を行うため、以下に示す解析条件を課した。

- (1) 最初のパッド出力が  $^{16}\text{N}$  のエネルギー損失に一致する。
- (2)  $^{16}\text{N}$  から  $^{19}\text{F}$  への変化に対応したパッドの出力波高変化パターンを示している。
- (3) 運動学的に  $^{19}\text{F}$  の放出角度は実験室系で 10 度以内に制限されている。
- (4) 同時測定された中性子と  $^{19}\text{F}$  は重心系で反対方向に放出されている。

以上の条件に測定誤差を考慮して、イベント選択を行った。図 3 は、このようにして選ばれたイベントの例である。

図 4 に、 $^{16}\text{N}(\alpha,n)$  反応断面積の実験結果を示した。曲線は、

[5]の核反応ネットワーク計算に用いられている黒体模型による計算値を示している[9]。今回の測定によって、重心系で 1.5MeV 近傍の断面積は、模型値に比べ桁程度大きなものであることが初めて分かった。

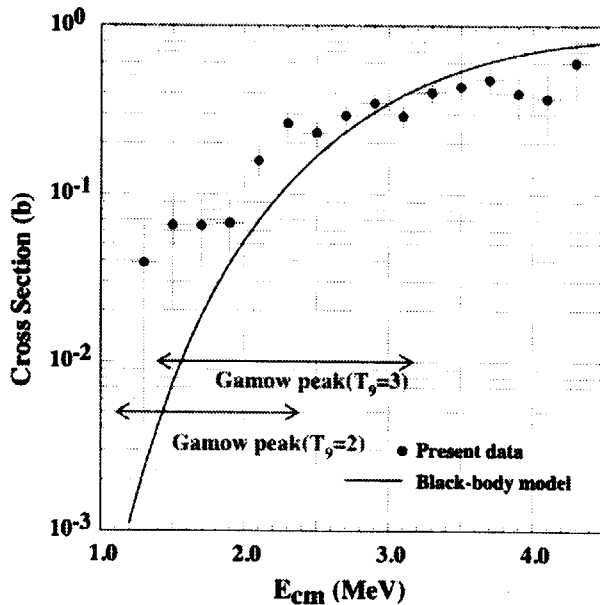


図4  $^{16}\text{N}(\alpha,n)$ 反応の励起関数

りである。今後データの蓄積とともに、様々な r-過程のシナリオに定量的な制限が付けられるものと期待している。

特に一連の実験課題の中でも  $^6\text{He}$ ,  $^8\text{Li}(\alpha,n)$ 反応は、安定な原子核が存在しない質量数 8 を超えて進む元素合成過程において、重要な反応とされている。これらの反応断面積の測定では、広いエネルギー範囲で高精度のデータを得ることが必要であろう。

2004年から本格的稼働を始める短寿命核分離加速実験装置では、厚い標的で生成された短寿命核をイオン化し、再加速するので、エネルギーの揃った強度の高い RNB が利用できる。高強度 RNB の実現によって、他の重元素合成過程にも研究範囲を広げる事が可能となる。これまでに未知核の崩壊分光法や核反応による直接・間接的な手法による様々な実験課題が提案され議論されているが、我々のグループでは、 $(\alpha,p)$ 反応断面積測定等の荷電粒子が関与する実験課題に向けて、検出器やデータ収集系の検討・改良を進めている。他方、イオン化には元素の化学的性質が影響するため、イオン源開発に時間を要する場合がある。このことから、稼働当初は、イオン化実績のある RNB による実験が目標となる。また、今回の研究で用いた反跳核分析器による RNB 生成法は、エネルギー分解能、ビーム強度ともに短寿命核分離加速装置に劣るものの、元素によらずに比較的簡便に RNB を利用できる、という特徴を有している。パイロットの実験を進める上で今後とも有効な RNB 生成手段となるであろう。

## References

- [1] H. Miyatake et al., Nucl. Instrum. Meth., **B204c** (2003) 747.
- [2] H. Ishiyama et al., Nuclear Physics, **A718c** (2003) 481.
- [3] T. Ishikawa et al., Nuclear Physics, **A718c** (2003) 484.
- [4] C. Sneden et al., Astro. J., 467(1996)819.
- [5] M. Terasawa et al., Astro. J., 562(2001)470.
- [6] Y. Mizoi et al., Nucl. Instrum. Meth., **A431**(1999)112.
- [7] T. Kawamura, Master thesis, 東京理科大(2002)
- [8] T. Ishikawa, Master thesis, 東京理科大(2002)
- [9] W.A. Fowler, Astro. J. Suppl., 91(1964)201.

この領域は、環境温度が  $T_9=2$  の時のガモフピーク位置になっており、今回のデータが  $^{16}\text{N}(\alpha,n)$  と  $^{16}\text{N}(n,\gamma)$  との分岐比に影響を与えるものと思われる。

今回の測定では、 $^{16}\text{N}$  のアイソマー状態を含む断面積測定であったため、この断面積増大の原因が基底状態によるものかアイソマー状態によるものかの特定はできない。また、 $^{20}\text{F}$  の共鳴状態の探索、終状態への  $\Gamma_n$  の導出を行うには、統計が足りない。今後、より高強度なビームが得られるようになった段階で、純粋な基底状態からなる  $^{16}\text{N}$ -RNB を用いて上記の物理量を測定すべきであろう。

## 5. 今後の展開

軽い中性子過剰核による  $(\alpha,n)$  反応断面積の系統的測定は、始まったばかり



## 2.7 Spectroscopy on neutron-rich nuclei at RIKEN —present and future—

H. Sakurai

*Department of Physics, University of Tokyo  
7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan  
The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)  
2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198, Japan*

### Abstract

Recent studies on nuclear structure by using radioactive isotope beams available at the RIKEN projectile-fragment separator (RIPS) are introduced. Special emphasis is given to experiments selected from the recent programs that highlight studies at  $N=20\sim 28$ ; on the large deformation of  $^{30}\text{Ne}$  and  $^{34}\text{Mg}$  via the in-beam gamma spectroscopy, and on the particle stability of very neutron-rich nuclei,  $^{34}\text{Ne}$ ,  $^{37}\text{Na}$  and  $^{43}\text{Si}$ . The RI Beam Factory (RIBF) project is illustrated through review of such present research activities at RIPS.

## 1 Introduction

Radioactive isotope (RI) beams, bringing out a high isospin degree of freedom, have given a great opportunity to investigate nuclei far from stability and to reveal out new phenomena in extreme conditions of isospin asymmetry. For instance, light and neutron-rich nuclei have exhibited exotic structures ascribed to new magicity at  $N=16$  and magicity loss at  $N\approx 8, 20$  and  $28$ . Such potentials of the RI beam physics have been demonstrated by the RI beam programs at the RIKEN accelerator research facility (RARF) since the RIKEN projectile fragment separator (RIPS) [1] was constructed. To enforce the advantages of RI beams, the RI Beam Factory (RIBF) project has been proposed at RIKEN, aiming to expand the range of radioactive nuclei, and to open up a new era for nuclear physics [2].

In this report, present activities at RARF, especially on nuclear structure of very neutron-rich at  $N=20\sim 28$ , are selected and reviewed. Emphasis is placed on unique spectroscopic methods and techniques developed on the basis of high intense RI beams obtained at RIPS, which may exemplify experimental programs at RIBF in future. Then, the experimental facility at RIBF are introduced.

## 2 Spectroscopy on very neutron-rich nuclei at $N=20\sim 28$

Very neutron-rich nuclei at  $Z\sim 12$  and  $N=20\sim 28$  have been very attractive in terms of exotic deformations at the magic numbers of  $N=20$  and  $28$ .

### 2.1 $N\sim 20$ region

Intensively investigated is the so-called island-of-inversion region around  $Z\approx 11$  and  $N\approx 20$ , where the nuclei have the tendency toward prolate deformation in spite of the effect of spherical stability due to the magicity of the neutron number of  $20$ . The large deformation

has been experimentally suggested, for example, by the extra enhancement of the binding energies [3, 4], a very low energy of the first  $2^+$  state and a large  $B(E2)$  value [5] for  $^{32}\text{Mg}$ . Theoretically, the possible deformation in this region has attracted much interest and several recent works are reported using shell models and mean field approaches. One of the shell models [6] predicts the deformation center at  $N=22$  for the Mg isotopes.

To investigate the nuclear structure in the island-of-inversion region, the in-beam gamma spectroscopy via several reactions has been developed for fast RI beams, and extensively applied to obtain nuclear properties through observation of low-lying and bound-excited states. To find whether and how deformation evolves in the isotopes with  $N=22$  and lower  $Z$  along  $N=20$ , the two isotopes,  $^{34}\text{Mg}$  and  $^{30}\text{Ne}$ , were investigated at RIPS.

The energy values of low lying excited states in  $^{34}\text{Mg}$  were determined from the RI beam fragmentation [7], where two  $\gamma$ -lines at 660(10) keV and 1460(20) keV were found. According to the systematics of the  $\gamma$ -ray intensities [7], the strongest line at 660 keV can be assigned to the  $2_1^+ \rightarrow 0_{g.s.}^+$  transition, resulting in  $E(2_1^+) = 660$  keV, and the next strongest at 1460 keV be to the  $4_1^+ \rightarrow 2_1^+$  transition. With this assignment, the value of  $E(4_1^+)$  is 2120 keV. The resulting value of the  $E(4_1^+)/E(2_1^+)$  ratio is about 3.2, close to the limit for rotation nuclei, 10/3.

The small  $E(2_1^+)$  value of  $^{34}\text{Mg}$  observed, which is even smaller than that of  $^{32}\text{Mg}$ , suggests a very large deformation for  $^{34}\text{Mg}$ . Indeed, the  $B(E2)$  value of  $^{34}\text{Mg}$  obtained by the intermediate-energy Coulomb excitation is  $631(126) e^2\text{fm}^4$ , which is the largest among the E2 strengths observed for the nuclei in the vicinity of the island of inversion [8].

For very neutron-rich nuclei with low beam intensities, a new technique is being developed to determine first excited states for even-even isotopes. This technique is based on the proton inelastic scattering with a liquid hydrogen target to enhance luminosities, and recently applied for  $^{30}\text{Ne}$  [9]. The  $E(2_1^+)$  value of  $^{30}\text{Ne}$  is determined to be 791(26) keV, which is almost equal or 100 keV smaller than that of  $^{32}\text{Mg}$ . This result shows that  $^{30}\text{Ne}$  has the same degree of deformation as  $^{32}\text{Mg}$ .

## 2.2 $N \sim 28$ region

Moving towards a more neutron-rich region with  $Z \sim 12$ , i.e., beyond the island-of-inversion, it is of great interest to investigate a possible transition from the intruder configuration to the normal one and the role of the  $N=28$  magicity for the stability of very neutron-rich nuclei. Stimulated by a recent experimental findings for  $^{44}\text{S}$ , possible deformation at  $N \sim 28$  has been theoretically discussed.

The neutron-rich stable isotope  $^{48}\text{Ca}$  has been a major tool to produce extremely neutron-rich nuclei up to  $N \sim 28$  by the projectile fragmentation reaction. In the most recent work using the RIPS [10], where the  $^{38}\text{Mg}$  and  $^{41}\text{Al}$  isotopes were discovered, the beam intensity was about 4 pA. A high intensity beam of 140 pA at its maximum has been recently realized via a new acceleration scheme at RIKEN, where the newly developed linear accelerator complex of the RFQ+RILAC+CSM was used as an injector to the RIKEN Ring Cyclotron. By using this intense  $^{48}\text{Ca}$  beam, an experiment searching for new isotopes has been recently performed [11].

As a result of the experiment, the heaviest isotopes of Ne, Na and Si have been extended to  $^{34}\text{Ne}$ ,  $^{37}\text{Na}$  and  $^{43}\text{Si}$ , and particle instability of  $^{33}\text{Ne}$ ,  $^{36}\text{Na}$  and  $^{39}\text{Mg}$  has been found, as shown in Fig. 1. Compared with the theoretical predictions, the particle

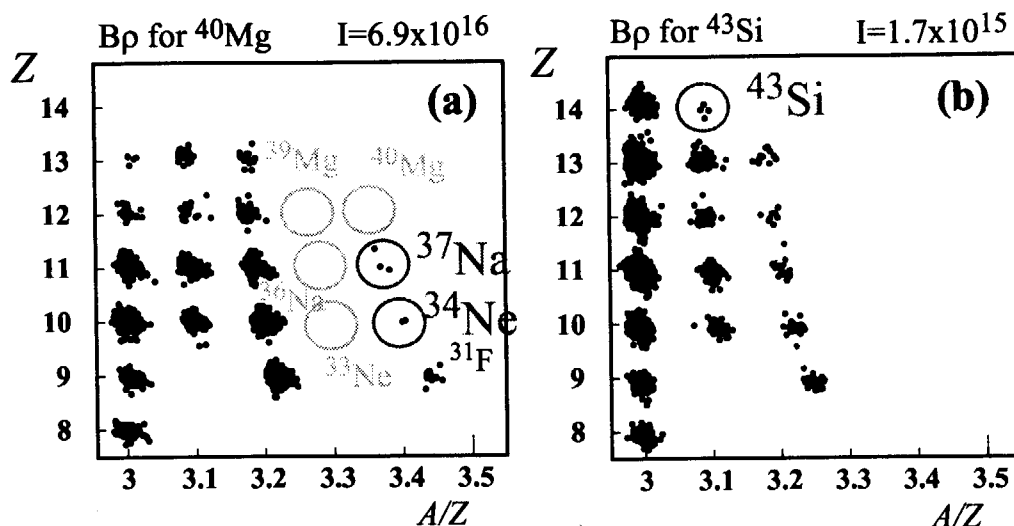


Figure 1: Two dimensional  $A/Z$  versus  $Z$  plot, which was obtained in the reaction of the  $^{48}\text{Ca}$  beam at  $64A$  MeV on a  $336\text{ mg/cm}^2$  tantalum target [11]. (a) was obtained at the  $^{40}\text{Mg}$   $B\rho$  setting and (b) at the  $^{43}\text{Si}$  setting. The integrated beam intensities for the two settings are  $6.9 \times 10^{16}$  and  $1.7 \times 10^{15}$  particles, respectively. The new isotopes,  $^{34}\text{Ne}$ ,  $^{37}\text{Na}$  and  $^{43}\text{Si}$ , are clearly separated and visible. No events associated with  $^{33}\text{Ne}$ ,  $^{36}\text{Na}$  and  $^{39,40}\text{Mg}$ , were obtained. By estimating the expected yields, we found that  $^{33}\text{Ne}$ ,  $^{36}\text{Na}$  and  $^{39}\text{Mg}$  are particle unbound. The expected yield for  $^{40}\text{Mg}$  was about 0.3 events. Therefore, the question whether  $^{40}\text{Mg}$  is particle bound or not is left for a future attempt with a higher luminosity.

stability found for  $^{43}\text{Si}$  may be attributed to a deformation effect at  $N=28$  [11].

### 3 RIBF project

Research activities for more neutron-rich and more heavier nuclei are being extended at RIBF. According to the performances of primary beams at RARF, the efficient productions for RI beams are limited up to  $Z < 30$ . In a higher  $Z$  region, many subjects in terms of extremely high-isospin asymmetry are remaining; for instance, the nuclear structure at the magic numbers as well as the collectivity, the dynamical aspects of nuclear matters with the neutron skins, and the nuclear astrophysics, especially for the r-process path. The RIBF project aims to proceed to such new domains of the nuclear chart.

To realize the wide dynamic-range of available RI beams over the nuclear chart needs more powerful primary beams than at the present facility. To achieve high performances for primary beams, new ring cyclotrons, IRC and SRC, are to be built as post accelerators of the existing ring cyclotron RRC [2]. The heavy-ion beams accelerated at SRC are to be used for RI beam productions via not only the projectile fragmentation reaction but also the fission reaction of U beams. The choice of the fission reaction with  $^{238}\text{U}$  is essential for RI productions around  $^{78}\text{Ni}$ .

Fragments of interest are collected and separated at fragment separators, called "Big-RIPS" [2]. RI beams produced at Big-RIPS's are delivered to experiments. The Big-RIPS

has a cascade configuration of two double-achromatic spectrometers with momentum dispersive focal planes. The first section is dedicated to the RI production and separation only. The second one which also has a momentum dispersive focal plane provides a several functions for the requirements. Particle identification can be realized with high resolutions on the basis of accurate determination of fragment momenta as well as time-of-flights. The resolving power in the second is good enough to identify fragments not-fully ionized.

One of experimental setups following the Big-RIPS is the zero-degree forward spectrometer (ZFS). The major function of the ZFS is to identify ejectiles scattered out from secondary targets, and to realize high signal-to-background ratios, which overcome low beam intensities of RI beams. Detectors equipped around the targets, such as gamma-ray detectors and detectors for recoil-out particles, serve as spectroscopy devices, and bring out unique information on the nuclear structure.

## 4 Summary

The exotic properties of very neutron-rich nuclei at  $N=20\sim 28$  have been observed on the basis of the high luminosity obtained at RIPS as well as the newly developed spectroscopic technique. The energies of low excited states and  $B(E2)$  value for  $^{34}\text{Mg}$  were observed and obtained via the in-beam gamma spectroscopy with the RI beam fragmentation and the intermediate energy Coulomb excitation method. The energy of the first excited state of  $^{30}\text{Ne}$  was determined in the proton in-elastic scattering. These results suggest that  $^{34}\text{Mg}$  has a larger deformation than  $^{32}\text{Mg}$ , and  $^{30}\text{Ne}$  has the same degree of deformation as  $^{32}\text{Mg}$ . The particle stability of  $^{34}\text{Ne}$ ,  $^{37}\text{Na}$  and  $^{43}\text{Si}$  and the particle instability of  $^{33}\text{Ne}$ ,  $^{36}\text{Na}$  and  $^{39}\text{Mg}$  were shown by the experiment using a high-intensity  $^{48}\text{Ca}$  beam. The further investigation for more neutron-rich and heavier isotopes will be performed at RIBF.

This work described here represents the efforts of many people, whom I have tried to adequately reference. In particular, most of the experiments presented here have been performed in collaboration with Univ. of Tokyo, Rikkyo University and RIKEN.

## References

- [1] T. Kubo et al., Nucl. Instrum. Meth. B 70 (1992) 309.
- [2] T. Kubo et al., Nucl. Instrum. Meth. B 204 (2003) 97.
- [3] H. Sakurai et al., Phys. Rev. C 54 (1996) R2802.
- [4] H. Sakurai et al., Phys. Lett. B 448 (1999) 180.
- [5] T. Motobayashi et al., Phys. Lett. B 346 (1995) 9.
- [6] Y. Utsuno et al., Phys. Rev. C 60 (1999) 054315.
- [7] K. Yoneda et al., Phys. Lett. B 499 (2001) 233.
- [8] H. Iwasaki et al., Phys. Lett. B 522 (2001) 227.
- [9] H. Yanagisawa et al., Phys. Lett. B, in press.
- [10] H. Sakurai et al., Nucl. Phys. A 616 (1997) 208c.
- [11] M. Notani et al., Phys. Lett. B 542 (2002) 49.





## 2.8 Multi-dimensional Fission-Barrier Calculations from Se to the SHE; from the Proton to the Neutron Drip Lines.

Peter MÖLLER<sup>1,\*</sup>, Arnold J. SIERK<sup>1</sup>, Ragnar BENGTTSSON<sup>2</sup>, and Akira IWAMOTO<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Theoretical Division, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico 87545, USA

<sup>2</sup>Department of Mathematical Physics, Lund Institute of Technology, P. O. Box 118, Sweden

<sup>3</sup>Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1195 Japan

We present fission-barrier-height calculations for nuclei throughout the periodic system based on a realistic theoretical model of the multi-dimensional potential-energy surface of a fissioning nucleus. This surface guides the nuclear shape evolution from the ground state, over inner and outer saddle points, to the final configurations of separated fission fragments. We have previously shown that our macroscopic-microscopic nuclear potential-energy model yields calculated "outer" fission-barrier heights ( $E_B$ ) for even-even nuclei throughout the periodic system that agree with experimental data to within about 1.0 MeV. We present final results of this work. Just recently we have enhanced our macroscopic-microscopic nuclear potential-energy model to also allow the consideration of axially asymmetric shapes. This shape degree of freedom has a substantial effect on the calculated height ( $E_A$ ) of the inner peak of some actinide fission barriers. We present examples of fission-barrier calculations by use of this model with its redetermined constants. Finally we discuss what the model now tells us about fission barriers at the end of the r-process nucleosynthesis path.

**KEYWORDS:** nuclear fission, fission barrier, multi-mode fission

### I. Introduction

In nuclear fission the nucleus evolves from a single ground-state shape into two separated fission fragments. During the shape and configuration changes that occur during this process the total energy of the system initially increases up to a maximum, the fission-barrier height, then decreases. The transition configuration between a single shape and two separated fragments is the *scission* configuration. At this configuration the "neck" radius is zero. Beyond the scission configuration the separated fragments are accelerated by their mutual Coulomb repulsion and reach kinetic energies in the range 150–200 MeV for actinide fission.

Calculations of fission barriers involve the determination of the total nuclear potential energy for different nuclear shapes. Such a calculation defines an energy landscape as a function of a number of shape coordinates. The fission barrier height is given by the energy relative to the ground state of the most favorable saddle point that has to be traversed when the shape evolves from a single shape to separated fragments. These landscapes are often displayed in terms of energy contour diagrams versus two shape coordinates with one shape coordinate corresponding to elongation and the other to the nuclear neck dimension, for example. However, in contrast to a geographical landscape the fission-energy landscape needs to be analysed in terms of more than two coordinates. It is a difficult problem to identify the relevant saddle points in these multi-dimensional spaces, and many incorrect approaches have appeared and do still appear in the literature. We use here a technique borrowed from the area of geographical topography studies, namely imaginary water flow,<sup>1,2)</sup> to determine the structure of the multidimensional fission-energy landscapes.

A number of models for the total nuclear potential energy exist. We use here the FRLDM macroscopic-microscopic model to calculate fission and fusion potential-energy landscapes. At first sight it may seem that a preferred model should be selfconsistent and based on effective two-body forces, for example some type of Hartree-Fock model. However with such models at least two problems are unresolved. First there exists no effective force which is proven to give both realistic masses and realistic fission barriers over the entire nuclear chart. Second, even if a realistic force were to be determined, it is inherently difficult and in practice probably impossible to determine correct saddle point shapes and heights in a Hartree-Fock model, as we discuss in the next section.

### II. Saddle-Point Determination

It is a common misconception that *constrained* self-consistent calculations, for example HF or HFB calculations with Skyrme or Gogny forces<sup>3-5)</sup> automatically take into account all non-constrained variables. For the application to saddle-point determination this is incorrect.

In HF calculations the energy is obtained in successive iterations that end when self-consistency is achieved between the potential and density. It is assumed that the shape and energy of the corresponding configuration corresponds to a local minimum in the vicinity of the starting configuration. To obtain fission barriers external constraints are imposed, for example a single quadrupole moment ( $Q_2$ ) constraint. The energy is then calculated for successive values of this constraint, and the fission-barrier height is taken to be the maximum on this curve. However, this maximum does not correspond to the saddle point in a higher-dimensional space, as is discussed in several publications.<sup>1,6,7)</sup> For example it is often observed that when the energy obtained in constrained calculations is

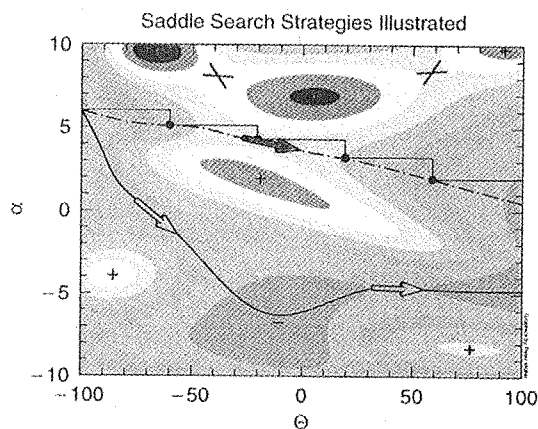
\* Corresponding author, Tel. +1-505-665-2210, Fax. +1-505-667-1931, E-mail: moller@moller.lanl.gov

plotted versus  $Q_2$  the curve exhibits discontinuous cusps. This means that a discontinuous transition occurred in the higher-dimensional space from one valley to another. The true saddle point is usually lower than the maximum on the discontinuous curve. In other cases a continuous curve may be obtained in constrained calculation, and it is then assumed that there is "no problem" because the energy curve is continuous and the shape of the nucleus evolves continuously.

**Figure 1** illustrates, in two dimensions, some of the difficulties that may occur in constrained HF calculation of the relevant fission-threshold saddle points. It also illustrates what may occur in a macroscopic-microscopic calculation of a multidimensional potential-energy landscape when the energy is displayed versus two shape coordinates and in which the energy in each point in the displayed two-dimensional diagram has been minimized with respect to additional shape degrees of freedom. Let  $\Theta$  represent a coordinate in the fission direction and  $\alpha$  all other coordinates and furthermore let the blue area at  $\Theta = -100$  and  $\alpha = 6.0$  represent the second minimum in the fission potential-energy surface. And let the blue area to the right represent the valley of separated fission fragments. In many calculations based on "minimizations" with respect to additional coordinates the procedure would now be to increase the fission coordinate  $\Theta$  by some increment, which for clarity we choose to be as large as 40, while keeping the additional shape-degrees of freedom fixed. This would take us along the initial part of the thin horizontal line to  $\Theta = -60$  and  $\alpha = 6.0$ . Starting from this position the energy would now be minimized for fixed  $\Theta = -60$ . This would take us down to the large black dot on the dot-dashed line. The process would then be repeated with the result that the energy would be obtained for the succession of black dots on the dot-dashed line. In our example here all the shape coordinates along this trajectory would vary continuously and no suspicion may arise that the saddle point found, in the region of the red arrow, is *not* the true saddle point, that is, it is not the *lowest* pass leading to the fission valley of separated fragments to the right in the figure. A minimum-energy trajectory should instead take us over the saddle-points identified by the green arrows in the figure. We can easily "see" this in a two-dimensional case as the example here, but in a higher-dimensional space it takes a clever algorithm to identify all of the relevant structure. This requirement led to the water-flow algorithm.

A numerical algorithm that locates the saddle points by the criteria that all first derivatives be zero and that the second derivatives have the appropriate signs would locate the saddles marked by crossed lines in the upper part of the figure in addition to the saddles we have already discussed. It would then be difficult to determine which of these represented the lowest mountain pass between the second minimum and the blue area to the right representing the fission valley of separated fragments. However, the water-flow method simply bypasses these saddle points.

The technique we use here to investigate the structure of the multidimensional surface is to employ imaginary water flows<sup>1,8)</sup> in the calculated 5-dimensional potential-energy surface. For example, we imagine that we stepwise flood, in in-

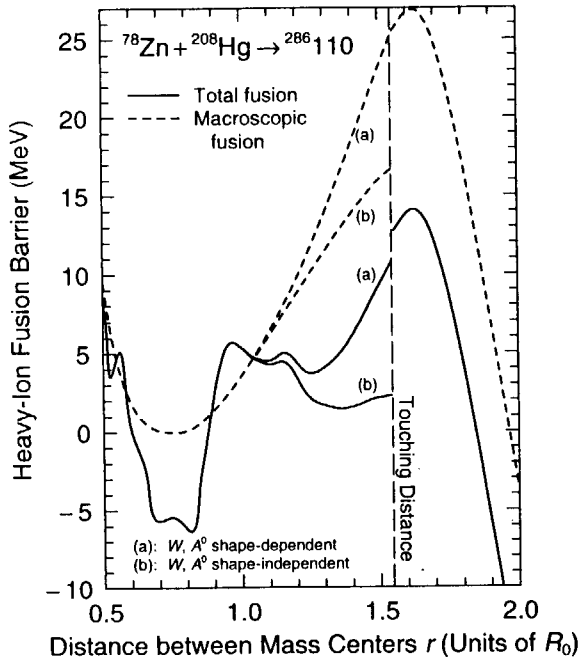


**Fig. 1** Maxima (+), minima (-), and saddle points (arrows or crossed lines) of a two-dimensional function. As discussed in the text it is not possible to obtain a lower-dimensional representation of this surface by "minimizing" with respect to the "additional"  $\alpha$  shape-degree of freedom.

tervals of 1 MeV, the second minimum with water. During the flooding process we check at what water level a preselected "exit" grid point that is clearly in the fission valley near scission gets "wet". When this happens, then the water level has passed the threshold energy level for fission. We can determine the saddle-point energy to desired accuracy by repeating the filling procedure with successively smaller stepwise increases of the water level. The saddle-point shape can also be obtained from this procedure.

### III. Model

Our potential-energy model is the macroscopic-microscopic finite-range liquid-drop model (FRLDM) as defined in Ref.<sup>9)</sup> with shape-dependent Wigner and  $A^0$  terms as defined in Ref.<sup>10)</sup> In fission-barrier calculations it is essential to formulate the model so that the energy obtained for the configuration of two touching spherical nuclei is the same whether the energy is calculated as that of a very deformed compound system or as that of two separate nuclei with appropriate Coulomb and nuclear interaction energies. By introducing shape dependences for the Wigner and  $A^0$  terms in the macroscopic part of the model and implementing other features in the microscopic part, we have assured that the model has the required properties. These issues are discussed in further detail in Refs.<sup>10,11)</sup> It is not possible to formulate the droplet model satisfactorily in the limit of the touching configuration; for this reason we use the FRLDM version in our calculations instead of the FRDM. In **Fig. 2** we show that when appropriate shape dependencies are included for the Wigner and  $A^0$  terms then we obtain approximate continuity at touching: almost the same energy is obtained



**Fig. 2** Calculated macroscopic and total potential energies for shape sequences leading to the touching configuration, at the long-dashed line, of spherical  $^{78}\text{Zn}$  and  $^{208}\text{Hg}$ . To the left the calculations trace the energy for a *single, joined* shape configuration from oblate shapes through the spherical shape at  $r = 0.75$  to the touching configuration at  $r = 1.52$ ; to the right the calculations trace the energy for separated nuclei to the touching point. To obtain continuity of the energy at touching, a crucial, necessary feature in realistic models, it is essential that various model terms depend appropriately on nuclear shape, as is the case for the curves (a). The slight remaining discontinuity in the *total* fusion energy curve arises because the Fermi surfaces of the nuclei readjust at touching, and because pairing and spin-orbit strength parameters also change discontinuously there.

**Table 1** Macroscopic model parameters of the FRLDM (1992) and those obtained in the present adjustment, designated FRLDM (2002) using barrier heights obtained in our five-dimensional calculation.

Constant	FRLDM (1992)	FRLDM (2002)
$a_v$	16.00126	16.02500
$\kappa_v$	1.92240	1.93200
$a_s$	21.18466	21.33000
$\kappa_s$	2.34500	2.37800
$a_0$	2.61500	2.04000
$c_a$	0.10289	0.09700

for a very deformed shape with zero neck radius as for (the identical) configuration of separate, but just touching,

**Table 2** Calculated barriers for 31 nuclei compared to experimental data. The first 5 barriers are macroscopic barriers..

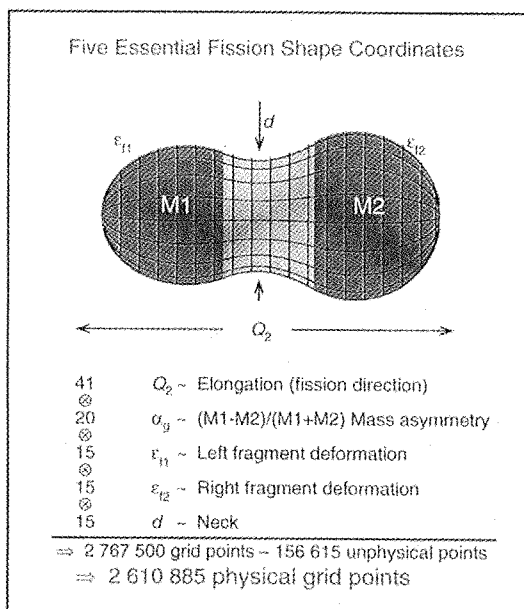
Z	A	$E_{\text{exp}}$ (MeV)	$E_{\text{calc}}$ (MeV)	$\Delta E$ (MeV)
34	70	39.4000	37.5861	1.8139
34	76	44.5000	43.8482	0.6518
42	90	40.9200	40.9223	-0.0023
42	94	44.6800	44.2096	0.4704
42	98	45.8400	46.8867	-1.0467
80	198	20.4000	21.4126	-1.0126
84	210	21.4000	22.0238	-0.6238
84	212	19.5000	20.2066	-0.7066
88	228	8.1000	7.4524	0.6476
90	228	6.5000	6.4703	0.0297
90	230	7.0000	5.6523	1.3477
90	232	6.2000	5.4591	0.7409
90	234	6.5000	5.3658	1.1342
92	232	5.4000	4.6764	0.7236
92	234	5.5000	4.8943	0.6057
92	236	5.6700	4.9845	0.6855
92	238	5.5000	5.4802	0.0198
92	240	5.5000	6.2746	-0.7746
94	236	4.5000	4.3537	0.1463
94	238	5.0000	4.3951	0.6049
94	240	5.1500	4.8376	0.3124
94	242	5.0500	5.5526	-0.5026
94	244	5.0000	6.2936	-1.2936
94	246	5.3000	7.0114	-1.7114
96	242	5.0000	4.2872	0.7128
96	244	5.1000	5.0275	0.0725
96	246	4.8000	5.8188	-1.0188
96	248	4.8000	6.4187	-1.6187
96	250	4.4000	5.9872	-1.5872
98	250	3.6000	5.8882	-2.2882
98	252	4.8000	5.6311	-0.8311

spherical daughter fragments.

#### IV. Shape Parameterization

Because fragment shell effects strongly influence the structure of the fission potential-energy surface long before scission, often in the outer saddle region, it is crucial to include in calculations the nascent-fragment deformations as two independent shape degrees of freedom. In addition, elongation, neck diameter, and mass-asymmetry shape degrees of freedom are required, at a minimum, to adequately describe the complete fission potential-energy surface. For nascent-fragment deformations we choose spheroidal deformations characterized by Nilsson's quadrupole  $\epsilon$  parameter. This single fragment-deformation parameter is sufficient because higher-multipole shape-degrees of freedom are usually of lesser importance in the fission-fragment mass region below the rare earths.

The three-quadratic-surface parameterization (3QS) is ideally suited for the above description.<sup>12)</sup> In the 3QS the shape of the nuclear surface is specified in terms of three smoothly



**Fig. 3** Five-dimensional shape parameterization used in the present potential-energy calculation. Different shades indicate the three different quadratic surfaces defined in the 3QS. The first derivative is continuous where the surfaces meet. Note that we give the charge quadrupole moment  $Q_2$  in terms of  $^{240}\text{Pu}$  with the same shape as the nucleus considered, so that the nuclear size effect is eliminated. The end body masses, or equivalently volumes,  $M_1$  and  $M_2$ , refer to the left and right nascent fragments were they completed to closed shapes. For the nascent spheroidal fragments we characterize the deformations by Nilsson's quadrupole  $\epsilon$  parameter.

joined portions of quadratic surfaces of revolution. Using this parameterization we here construct, calculate, and investigate complete five-dimensional spaces with 2 610 885 grid points as illustrated in Fig. 3.

A common notation used to characterize the fragment mass asymmetry of a fission event is  $M_H/M_L$  where  $M_H$  and  $M_L$  are the masses of the heavy and light fission fragments respectively. For the purpose of grid generation for the potential-energy calculation it is convenient to relate a mass-asymmetry shape degree of freedom for the pre-scission nucleus to the final fission-fragment mass asymmetry in some fashion, although the final mass division, strictly speaking, cannot be determined from the static shapes occurring before scission. However, the exact nature of our definition of mass asymmetry for a single shape has little effect on the calculated saddle-point energies and shapes because our five-dimensional grid covers all of the physically relevant space available to the 3QS parameterization, regardless of how we choose to define a "mass-asymmetry" coordinate. In order to obtain a definition of mass asymmetry that is meaningful close to scission,

and equations that are reasonably simple to work with for the purpose of grid-point generation, we define an auxiliary grid mass-asymmetry parameter  $\alpha_g$

$$\alpha_g = \frac{M_1 - M_2}{M_1 + M_2} \quad (1)$$

where  $M_1$  and  $M_2$  are the volumes inside the end-body quadratic surfaces, were they completed to form closed-surface spheroids. Thus

$$\alpha_g = \frac{a_1^2 c_1 - a_2^2 c_2}{a_1^2 c_1 + a_2^2 c_2} \quad (2)$$

where  $a$  denotes the transverse semi-axis and  $c$  the semi-symmetry axis of the left (1) and right (2) quadratic surfaces of revolution. With this definition we select 20 coordinate values corresponding to

$$\alpha_g = -0.02 \dots (0.02) \dots 0.36 \quad (3)$$

We have closely spaced the asymmetry coordinate so that we will be able to spot favorable saddle-point shapes that may not appear in a more sparsely spaced grid. For  $^{240}\text{Pu}$  the values 0.00, 0.02, and 0.36 of the mass-asymmetry coordinate  $\alpha_g$  correspond to the mass divisions 120/120, 122.4/117.6, and 163.2/76.8, respectively.

Because of the intuitive appeal of the notation  $M_H/M_L$  we use it below to characterize the "asymmetry" of a single shape. We then connect  $M_H$  and  $M_L$  to  $\alpha_g$  through

$$M_H = A \frac{1 + \alpha_g}{2} \quad \text{and} \quad M_L = A \frac{1 - \alpha_g}{2} \quad (4)$$

for a nucleus with  $A$  nucleons. For shapes with a well-developed neck the ratio obtained with this definition can be expected to be close to the final fragment mass-asymmetry ratio. We cannot conveniently use  $M_1$  and  $M_2$  to designate the final fragment mass asymmetries because they do not exactly sum up to the total nuclear volume or mass. Equation (4) simply represents a scaling of  $M_1$  and  $M_2$  so that their sum after scaling adds up to the total mass number  $A$ .

We have performed several multi-million grid-point calculations for different regions of nuclei, down to  $^{70}\text{Se}$ . For fission-fusion potential-energy surfaces in the superheavy-element region we have extended the range of the mass-asymmetry coordinate to  $\alpha_g = 0.66$ . The corresponding deformation space consisted of 3 637 478 deformation grid points when 33 different elongations ( $Q_2$ ) were considered.

## V. Global Barrier Studies

In general our calculated potential-energy surfaces exhibit a complex structure with multiple minima, maxima, saddle points and valleys. Structures significant in fission are extracted by use of the water immersion techniques outlined above. For nuclei in the radium through light actinide region we find consistently that beyond the second minimum the potential-energy surfaces are dominated by two valleys leading to symmetric and asymmetric division into two fragments. The two valleys are separated from the second minimum by *different* saddle points and from each other by a

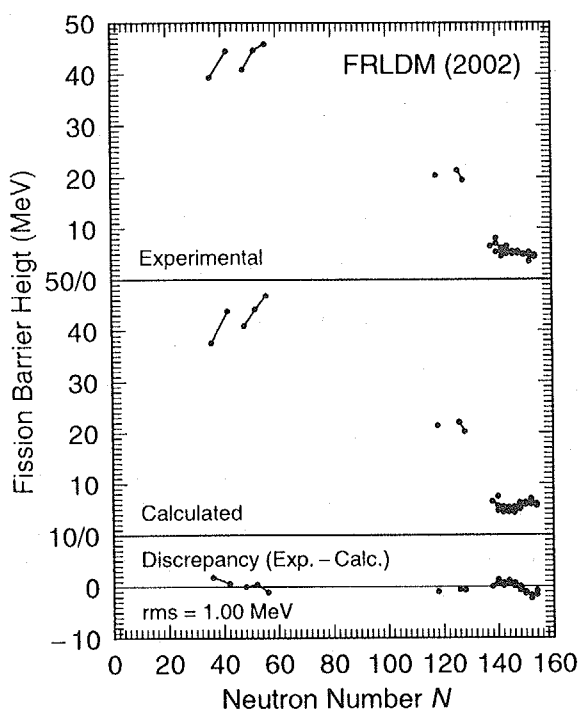


Fig. 4 Comparison of calculated and experimental fission-barrier heights for nuclei throughout the periodic system, after a readjustment of the macroscopic model constants. It is assumed here that the saddle-point shapes are not affected by the readjustment. Experimental barriers are well reproduced by the calculations, the rms error is only 0.999 MeV for 31 nuclei. In the actinide region it is the outer of the two valleys that is compared to experimental data.

ridge. We find that for  $^{228}\text{Ra}$  the ridge peaks at 2.47 MeV above the entrance saddle to the symmetric valley, whereas for  $^{232}\text{Th}$  it peaks at 1.56 MeV. For  $^{234}\text{U}$  the ridge only rises marginally above the entrance saddle to the symmetric valley. For still heavier systems such as  $^{240}\text{Pu}$  we find that the symmetric valley emerges as a "side valley" to the asymmetric valley at some point beyond a single outer saddle at the beginning of the asymmetric valley. Calculated features of the five-dimensional potential-energy surface for  $^{228}\text{Ra}$  are illustrated in Fig. 5.

However, our aim in this study is not to perform detailed studies of the structure of individual potential-energy landscapes, but to obtain new model parameters that allow us to calculate realistic barrier heights for nuclei throughout the periodic system. Because fission saddle points in our five-dimensional deformation spaces are systematically lower than in earlier, lower-dimensional spaces a readjustment of the macroscopic-model constants is necessary to avoid systematic errors in the calculated fission-barrier heights. We here perform such a readjustment in a manner similar to how our

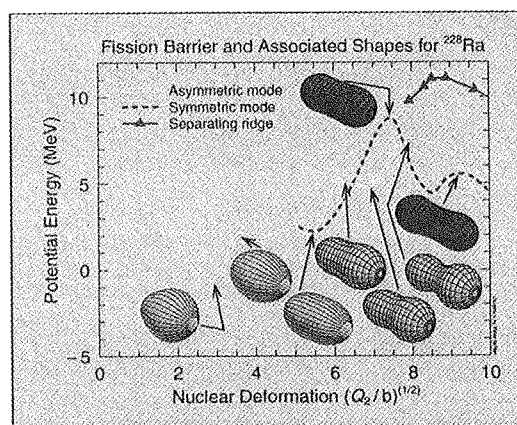


Fig. 5 Calculated potential-energy valleys and ridges and corresponding nuclear shapes for  $^{228}\text{Ra}$ . Two fission paths exist: one asymmetric path and one symmetric path. The symmetric path has a higher fission saddle point and the more elongated shapes in the valley beyond the saddle point indicate that total fragment kinetic energies in the symmetric mode are lower than in the asymmetric mode. For excitation energies just above the symmetric saddle the ridge separating the two valleys is high enough to keep the two modes well separated.

FRLDM (1992) constants were determined.<sup>9)</sup> Only 6 constants are varied; the others remain unchanged. A comparison between the old and the new constants is found in Table 1. In the FRLDM (1992) the mass-model error was 0.779 MeV, and the barrier rms error was 1.40 MeV. We now obtain a mass-model error of 0.752 MeV, and a barrier rms error of 0.999 MeV for a larger and slightly different barrier data set. Calculated barriers for the 31 nuclei used in this constant determination are compared to experimental data in Table 2 and in Fig. 4.

Because there is a small change in barrier deformations for the new set of constants, an iterative procedure is required to determine a final set of FRLDM model parameters (new saddle-point deformations have to be calculated with the new parameters, parameters must be redetermined, and so on). However, based on test calculations we expect the converged results of such an iteration will differ very little from the first iteration presented here. The constants presented here differ slightly (in particular for  $a_0$ ) from a set presented in Ref.<sup>13)</sup> The constants presented there were affected by an error in the constant adjustment program in the expression for the  $a_0$  term. However, none of the other previous results, conclusions or figures were affected significantly by this computer-program bug. In our current studies here we have checked the calculation of macroscopic model saddle-point shapes and energies by use of two completely different and independently written codes.

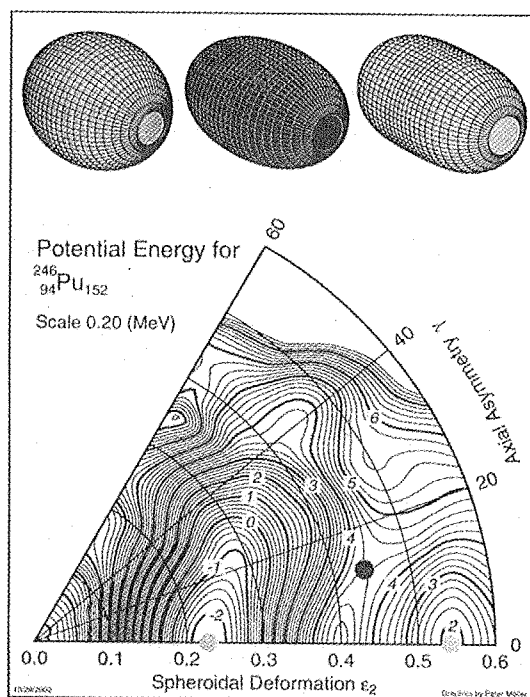


Fig. 6 Calculated potential-energy surface for  $^{246}\text{Pu}$ . For this isotope of Pu the first saddle is lowered by about 0.5 MeV due to the axial-asymmetry shape-degree of freedom.

## VI. Axially Asymmetric Shapes

It has long been known that axially asymmetric shape degrees of freedom lower the inner "first" barrier peak of many actinide nuclei<sup>14-16)</sup> Our folded-Yukawa single-particle code has previously not included this shape degree of freedom, but we have recently extended the model and associated computer code to include triaxiality. As an example of the effect of axial asymmetry we show in Fig. 6 a calculated potential-energy surface for  $^{246}\text{Pu}$  for modest deformation. As is customary, we display the calculated potential energy as a function of  $\epsilon_2$  and  $\gamma$  with  $\epsilon_2$  varying in the radial direction and  $\gamma$  in the angular direction. At each point, the energy has been minimized with respect to the third shape-degree of freedom,  $\epsilon_4$ . In general this procedure will not yield a two-dimensional surface that correctly represents the significant structures of the higher-dimensional space. However, we have found, by employing an imaginary water-immersion technique to analyze the full three-dimensional space, that the saddles and minima in this particular two-dimensional surface presented here correctly represents the three-dimensional structures. Our deformation coordinates are such that  $\gamma = 0$  represents prolate nuclei and  $\gamma = 60$  represents oblate nuclei. The tip of the "pie" corresponds to spherical shape. The energy is plotted in MeV, with  $\dots - 1, 0, 1, \dots$  MeV given by thick lines. The spac-

ing between the thin lines is 0.2 MeV. The first minimum is marked by a blue dot, the second minimum or fission-isomeric state by a green dot and the saddle between these two minima ("the first peak in the double-humped fission barrier") is marked by a red dot. The shapes associated with these features are shown in the top of the figures in colors of the dots corresponding to their location. For heavier actinides the effect of axial asymmetry on the first peak in the barrier may be larger. For example for  $^{258}\text{Fm}$  we find the first barrier peak is lowered by close to 2 MeV by axial asymmetry.

## VII. Barriers at the End of the r-Process

With the dual aim of studying the end of the r-process and obtaining systematic results on heavy fission barriers we calculate barriers for about 3000 nuclei beyond  $A = 190$ . We calculated the inner barrier region in a three-dimensional space, specifically  $(\epsilon_2, \epsilon_4, \gamma)$ . This calculation is done for a dense grid:  $\epsilon_2 = 0(0.025)0.75$ ,  $\epsilon_4 = -0.12(0.02)0.12$ , and  $\gamma = 0(2.5)60$ , that is for a total of 10075 deformation grid points (Figure 6 is based on a slightly smaller grid). The outer barrier region is calculated in the same five-dimensional grid as has been used in earlier calculations, but we start the calculation at  $Q_2$  values corresponding to fission-isomeric-state deformations, namely 29.5 barns, and end at  $Q_2 = 128.69$  barns. This means we do the calculations for grid points 11-36 in the calculation that appeared in Nature<sup>7)</sup> for a total of 1755000 grid points. It is quite sufficient to consider this more limited range, because we get the first barrier peak height from the calculation in gamma space, and the ground-state energy from our FRLDM (2002) mass table. This mass table is identical to the FRLDM (1992) mass table except it is calculated with model constants determined from our current adjustment. The barrier calculations are also carried out with our FRLDM(2002) set of macroscopic parameters given in Table 1.

There is some uncertainty of the magnitude of fission barriers for nuclei in the vicinity of the end of the r-process. Early studies in quite different models indicated that fission barriers near  $A = 260$  were quite low, 4 MeV less for, for example,  $^{258}\text{Pu}$ .<sup>17,18)</sup> These nuclei would fission immediately upon neutron capture in the r-process. This result was in agreement with the non-observation of nuclei with  $A > 257$  in the debris from nuclear explosions. However, neither one of these early calculations were based on well-studied globally tested mass/fission-barrier models with proven extrapolateability.

A later barrier calculation in 1989,<sup>19)</sup> based on the Moller-Nix 1981 mass model, which was found to be reliable for mass predictions also for masses not known when the model was presented, gave different results for these neutron-rich barriers. For  $^{258}\text{Pu}$  a barrier height of 6 MeV was obtained. However, these barrier calculations were performed in the  $\epsilon$  parameterization, which does not describe the other barrier region well. In addition the potential energy was only calculated for a few hundred different shapes.

From our more recent studies we now know that more complete investigations of larger-dimensional deformation spaces are necessary to accurately determine the fission saddle points.

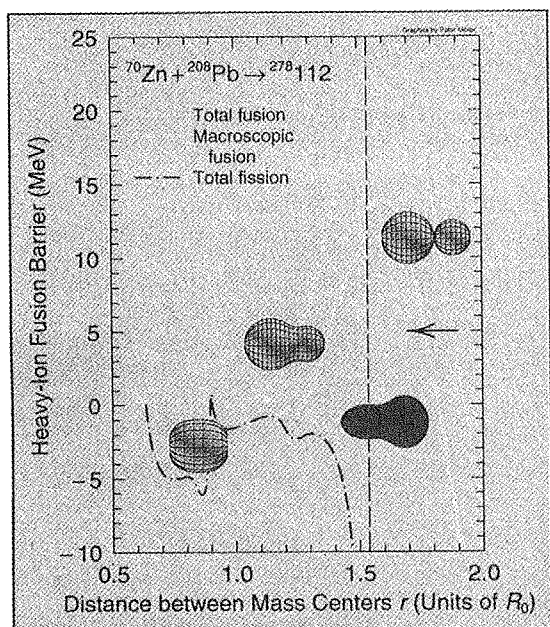


Fig. 7 Calculated fusion barriers for a cold-fusion reaction leading to  $^{278}112$ . The fission barrier for the compound system is also shown. The arrow indicates the incident energy corresponding to the maximum evaporation-residue cross section.

This requires that the potential energy is calculated for several million different shapes and can lead to 3 MeV or so lower saddles for some nuclei relative to calculations in more restricted deformation spaces.<sup>7,8)</sup> In our current calculations we perform the calculations in such large deformations spaces, in the FRLDM (2002) model with its redetermined parameters. We have do not yet have results for all 3000 nuclei beyond  $A = 190$ . However, for  $^{258}\text{Pu}$  we calculate that the height of the first barrier peak is 4.11 MeV and the height of the second barrier peak is 4.30 MeV. Thus, it again seems that the barriers in this region are low enough to end the r-process. In contrast to earlier calculations of fission barriers in this region, these new results are the first that are obtained in models that have been globally tested both for fission barriers and ground-state masses. More complete results will be forthcoming.

### VIII. 5D Potential-Energy Surfaces for Super-Heavy Elements.

In Fig. 7 we show calculated fusion and fission barriers for a cold-fusion reaction leading to  $^{278}112$ . In the calculation the fusion barrier outside touching is calculated for spherical target and projectile. The discontinuity at touching occurs because the  $Z/N$  ratio is different in target and projectile and is assumed to instantaneously adjust to a common ratio after touching. Inside touching the fusion barriers are calculated for a prescribed sequence of shapes for which the ends are kept

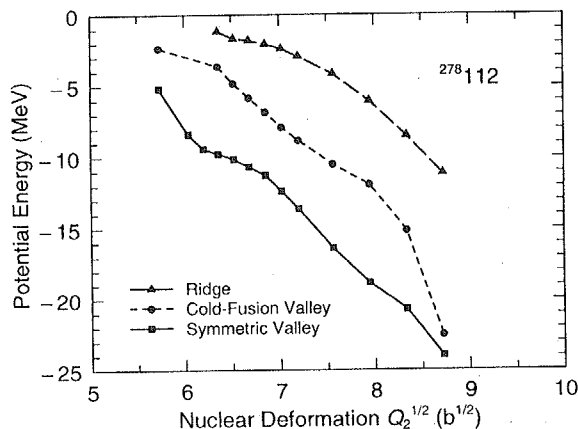


Fig. 8 Valleys in the calculated 5D potential-energy surface of the compound system  $^{278}112$  and the separating ridge. The touching configuration of spherical  $^{70}\text{Zn}$  with spherical  $^{208}\text{Pb}$  corresponds to  $Q_2^{1/2} = 6.6$ . See further discussion in the text.

spherical and the the mass asymmetry between the left and right portions of the system is retained. In contrast the fission-barrier curve is based on minima and saddle points obtained in a full five-dimensional calculation with several million grid points. The arrow in the figure indicates approximately the energy chosen in this experiment.<sup>20)</sup> This energy is substantially below the calculated value of the "Coulomb barrier" between the spherical target and projectile. We will elsewhere argue that we feel that in actual collisions shape polarization will considerably lower this static barrier.

We are able to make more detailed studies of the "fusion barrier" inside the touching point by analyzing our five-dimensional potential-energy landscapes. For the compound system  $^{278}112$  we find only two valleys of significance in the outer barrier region. For details how the valleys are identified and the definition of the elongation coordinate  $Q_2$  see Ref.<sup>7)</sup> In the cold-fusion valley the shapes of the partial fragments are almost independent of  $Q_2$ . We find that  $M_H = 206$ , and  $M_L = 72$  and that the spheroidal deformation coordinate corresponding to the heavy fragment is  $\epsilon_{f1} = -0.10$  and to the light fragment  $\epsilon_{f2} = 0.35$ . The touching configuration of spherical  $^{208}\text{Pb}$  and  $^{70}\text{Zn}$  corresponds to  $Q_2 = 43$ . The fusion valley we see in the five-dimensional calculation is much lower than the fusion barrier corresponding to the frozen spherical configurations studied in Fig. 8 as would be expected. A more extensive study of heavy-element fusion is in progress and will be published elsewhere.

### IX. Summary

To model fission potential-energy surfaces over a wide range of shapes, and in particular for shapes with small necks we have to select the FRLDM over the FRDM.<sup>7,9)</sup> In the FRLDM model we are now able to calculate fission-barrier

heights from the lightest measured system around  $A = 70$  to some of the heaviest known Cf isotopes with an rms error of only 0.999 MeV. Simultaneously we can in the FRDLM model calculate nuclear masses from  $^{16}\text{O}$  to the super-heavy region, with a model error of 0.75 MeV, for a 1989 data set.<sup>21)</sup> Because of the proven reliability for regions of new data for the mass application of the model, we are now undertaking a large-scale study of barriers of 3000 heavy nuclei beyond  $A = 190$ . A particular aim of this calculation is to provide barrier input to astrophysical studies of the end of the rapid-neutron-capture nucleo-synthesis process in the universe. We are currently also applying the model to studies of superheavy-element formation.

#### References

- 1) A. Mamdouh, J. M. Pearson, M. Rayet, and F. Tondeur, Nucl. Phys. **A644** (1998) 389.
- 2) B. Hayes, Am. Sci. **88** (2000) 481.
- 3) S. Åberg, H. Flocard, and W. Nazarewicz, Ann. Rev. Nucl. Sci. **40** (1990) 439.
- 4) J. L. Egido, L. M. Robledo, and R. R. Chasman, Phys. Lett. **B393**, (1997) 13.
- 5) J. F. Berger, M. Girod, and D. Gogny, Nucl. Phys. **A502** (1989) c85.
- 6) W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. **A601** (1996) 141.
- 7) P. Möller, D. G. Madland, A. J. Sierk, and A. Iwamoto, Nature **409** (2001) 785.
- 8) P. Möller and A. Iwamoto, Phys. Rev. C **6104** (2000) 7602.
- 9) P. Möller, J. R. Nix, W. D. Myers, and W. J. Swiatecki, Atomic Data Nucl. Data Tables **59** (1995) 185.
- 10) P. Möller, J. R. Nix, and W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. **A492** (1989) 349.
- 11) P. Möller and J. R. Nix, Nucl. Phys. **A281** (1977) 354.
- 12) J. R. Nix, Nucl. Phys. **A130** (1969) 241.
- 13) Peter Möller, D. G. Madland, A. J. Sierk, and A. Iwamoto, Proc. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), October 7–12, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, (2002) p. 703–708, (Los Alamos Preprint LA-UR-01-4851).
- 14) V. V. Pashkevich, Nucl. Phys. **A133** (1969) 400.
- 15) S. E. Larsson, S. G. Nilsson, and I. Ragnarsson, Phys. Lett. **38B** (1972) 269.
- 16) U. Götz, H. C. Pauli, and K. Junker, Phys. Lett. **39B** (1972) 436.
- 17) W. M. Howard and J. R. Nix, Proc. Third IAEA Symp. on the physics and chemistry of fission, Rochester, 1973, vol. I (IAEA, Vienna, 1974) p. 145.
- 18) W. M. Howard and P. Möller, Atomic Data Nucl. Data Tables **25** (1980) 219.
- 19) P. Möller, J. R. Nix and W. J. Swiatecki, Proc. 50 Years with Nuclear Fission, Gaithersburg, 1989 (American Nuclear Society, La Grange Park, 1989) p. 153.
- 20) S. Hofmann, F. P. Hessberger, D. Ackermann, G. Münzenberg, S. Antalic, P. Cagarda, B. Kindler, J. Kojouharova, M. Leino, B. Lommel, R. Mann, A.G. Popeko, S. Reshitko, S. Šáro, J. Uusitalo, A.V. Yeremin, Eur. Phys. J. A. **14**, (2002) 147.
- 21) G. Audi, Midstream atomic mass evaluation, private communication (1989), with four revisions.





## 2.9 超重元素核化学の現状 Status of Super Heavy Element Research in Japan

工藤久昭

H. KUDO

新潟大学理学部化学科

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University

わが国における超重元素核化学の現状について、理研での超重核合成と原研での超重元素の化学について簡単に紹介する。

### 1. 理研に於ける超重核合成

理化学研究所では、重イオン線形加速器 (RILAC) と気体充填型反跳分離装置 (GARIS) により、超重元素合成にむけて実験を行っている。GARIS の概略図を図 1 に示す。RILAC からのビームは差動排気により真空切りの膜を通ることなしに回転式標的に入射する。標的は、 $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  炭素箔に標的物質を  $200\text{--}300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  蒸着し、さらにスパッタリングからの保護のため、 $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  の炭素を蒸着している。入射粒子は最初の双極磁石 (D1) 中で蒸発残留核と分離されるが、ビームストッパーとしてタンタル板を用い、バックグラウンドの原因となる軽粒子放出を抑制している。約  $0.5 \text{ torr}$  のヘリウムガス中で平衡電荷に達した蒸発残留核は、2つの四重極磁場 (Q1, Q2) と、バックグラウンド軽減のために新たに追加した双極磁場 (D2) を通り、 $1 \mu\text{m}$  マイラー箔を通り抜け、検出系へと導かれる。GARIS の中心軌道長は  $5.76 \text{ m}$  であり、 $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線を用いて測定したアクセプタンスは  $12.2 \text{ msr}$  である。

検出系は、飛行時間測定のための2台のマイクロチャンネルプレート (MCP) と、位置感応型半導体検出器 (PSD) 及びそれを取り囲む4台の半導体検出器 (SSD) と、PSD 下流に配置された veto 検出器から成る。PSD は  $6 \times 6 \text{ cm}^2$  の大きさであり、横方向  $3.75 \text{ mm}$ 、縦方向  $1 \text{ mm}$  の位置分解能と  $60 \text{ keV}$  (FWHM) のエネルギー分解能を持っている。1台の SSD は PSD と同じ面積であり、PSD から逃れた事象に対して、 $2\pi$  の  $70\%$  の立体角を持っている。2台の MCP 間の距離は  $295 \text{ mm}$ 、時間分解能  $500 \text{ ps}$ 、透過効率  $94\%$  であり、 $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線に対して  $99.99\%$  の感度を有する。

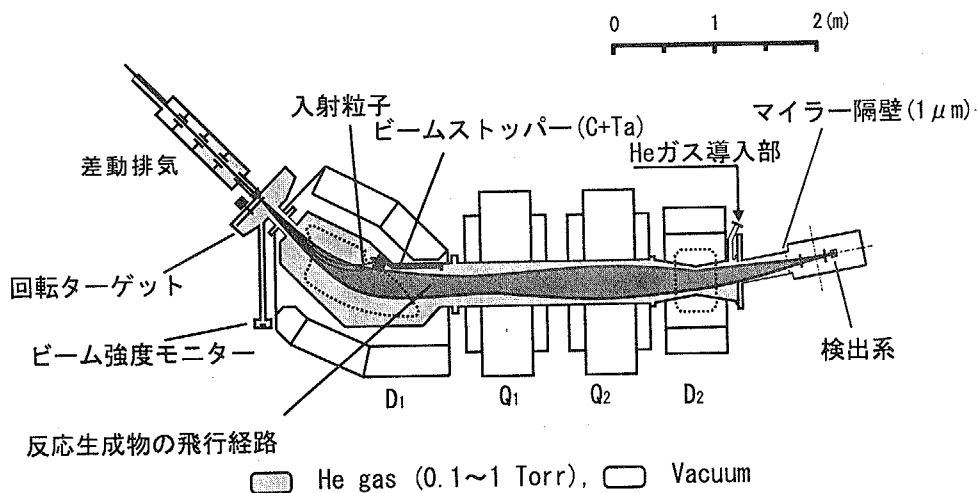


図 1: 理研 GARIS

核反応によって生成する核反応生成物は、生成直後、広い運動量分布と電荷分布を持っているが、気体充填型反跳分離装置では、磁場中のガスとの衝突により、見かけ上ひとつの電荷（平衡電荷  $\bar{q}$ ）にそろえることが可能である。この原理により、収集効率が高くなるわけであるが、まず、新元素を探索する上で最も重要となるパラメーターの一つであるヘリウムガス中における重元素の平衡電荷を、 $^{208}\text{Pb}$ 、 $^{209}\text{Bi}$ 、及び  $^{169}\text{Tm}$  を標的として、 $^{40}\text{Ar}$ 、 $^{48}\text{Ca}$ 、 $^{58}\text{Fe}$ 、及び  $^{64}\text{Ni}$  イオンを照射することにより、種々の速度の反跳標的核及び核反応によって生成した核種 ( $^{193}\text{Bi}$ 、 $^{196}\text{Po}$ 、 $^{200}\text{At}$ 、 $^{204,203}\text{Fr}$ 、 $^{212}\text{Ac}$ 、 $^{234}\text{Bk}$ 、 $^{245}\text{Fm}$ 、 $^{254}\text{No}$ 、 $^{255}\text{Lr}$ 、 $^{265}\text{Hs}$ ) を用いて測定し、最適  $B\rho$  値と反跳速度  $v/v_0$  ( $v_0 = c/137$ ,  $c$ :光速) から見積もった  $\bar{q}$  をもとに検討した結果、非常に直線性の良い  $\bar{q} = 0.625 \times (v/v_0) \times Z^{1/3}$ 、 $[8 \leq (v/v_0) \times Z^{1/3} \leq 20, Z \geq 82]$  という経験式を得た。この経験式によると、108 番元素や 110 番元素、あるいは新元素である 113 番元素に対して、内挿によりその平衡電荷を見積もることができることになる。また、既知の反応断面積の反応を用いた収率の測定より、分布幅は、反跳核とヘリウムガス原子との多重散乱により説明することができ、 $v/v_0 \geq 3$  をもつ核に対して、GARIS の収集効率は約 80% であることを見出した。

得られた結果をもとに、 $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni}, n)^{271}[110]$  反応による 110 番元素の合成実験を行った。PSD のバックグラウンドは平均ビーム強度  $0.4 \text{ p}\mu\text{A}$  に対して、約 2.3 cps と非常に低いものであり、単純に考えて、10 秒間に 1 対の擬似相関  $\alpha$  事象を与える確率は約  $10^{-6}$  である。時間、位置、及び  $\alpha$  線のエネルギーの情報をもとに、時系列相関解析により得られた  $^{271}[110]$  及びその娘核種の崩壊を図 2 に示す。 $^{271}[110]$  の寿命は 2 種類存在するようであり、1 つは  $2.90^{+3.0}_{-0.9} \text{ ms}$  の平均寿命であり、もう一方は、 $124^{+646}_{-47} \text{ ms}$  である。 $^{271}[110]$  の崩壊エネルギー、寿命とも GSI の結果 [1] と誤差範囲内で一致している。このように、異なる原理に基づいた測定で、確認がなされたことにより、 $^{271}[110]$  の合成は確定されたと見做して良いであろう。

励起関数に関しては、GSI の報告よりも約 4 MeV 高エネルギー側にピークがあることがわかった。この励起関数の違いは、極めて生成断面積の小さい、より重い元素合成の際には決定的な意味を持つ。

最近、 $^{209}\text{Bi}(^{64}\text{Ni}, 1n)^{272}[111]$  反応による 111 番元素についても追試・確認に成功している。

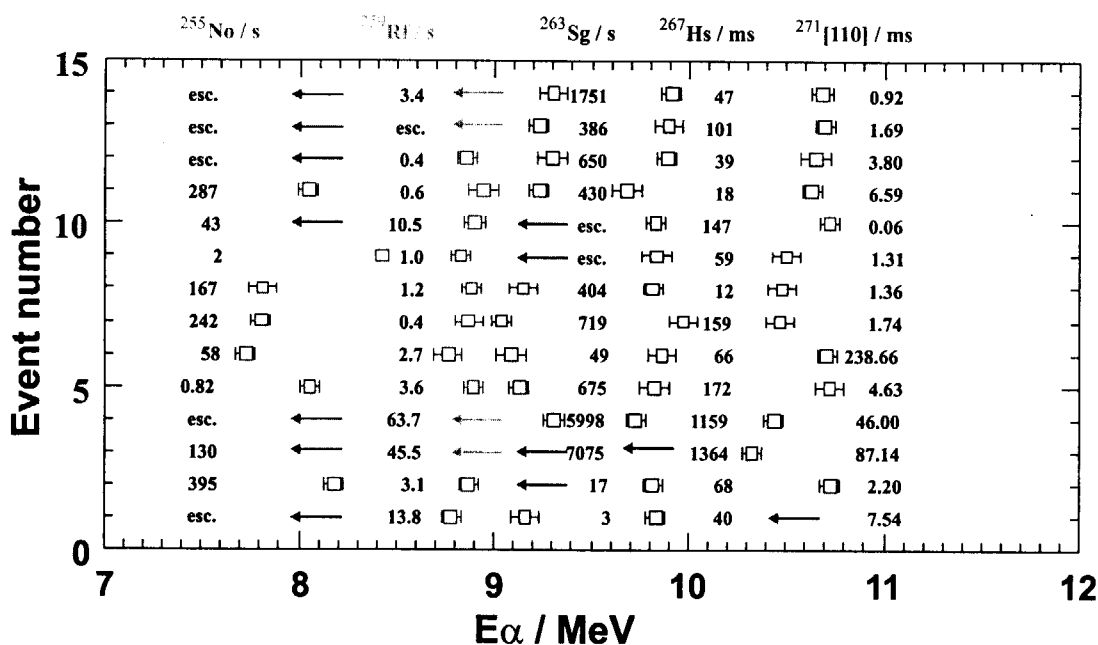


図 2:  $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni}, n)^{271}[110]$  反応で観測された  $\alpha$  崩壊連鎖のエネルギーと寿命

## 2. 原研に於ける超重元素の化学

重い原子系においては、核電荷と軌道電子の相互作用が相対論的になり、軽い原子系から予想される性質すなわち周期律表での族の類似性から外れてくることが予想される。従って、超アクチノイド元素の化学的性質を調べることは、元素の理解という意味において非常に重要である。しかしながら、超アクチノイド元素は一般にほとんど全て短寿命核種であり、扱える量も極めて少量であるため、ほとんどの場合一度に扱える量は原子1個である。(atom-at-a-time chemistry) このような状況下での、化学的性質の研究は、非常に困難なものである。

超アクチノイド元素のうち、最初の元素である Rf に関しては、これまでいくつかの実験が報告されている。しかしながら、それらの結果の間には、矛盾があることや、実験の正確さにかけているものがあり、明確な結論が出ていなかった。例えば、12 M の塩化物イオン水溶液からリン酸トリブチル (TBP) のベンゼン溶液に抽出すると、Rf は同族の Zr や Hf とは異なり、擬似 4 族元素である Pu と類似している。[2] また、0.1 M 硝酸と種々の濃度のフッ酸溶液からのイオン交換挙動においても、擬似 4 族元素である Th と類似しており、Rf は同族の Zr や Hf とは異なっているという結果が報告されている。[3]

原研では、タンデム加速器で  $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261}\text{Rf}$  反応により生成される  $^{261}\text{Rf}(T_{1/2}=78 \text{ s})$  のイオン交換挙動を、自動イオン交換分離装置 (Automated Ion-exchange separation apparatus coupled with the Detection system for Alpha spectroscopy, AIDA) を用いて詳細に検討した。その際、 $^{261}\text{Rf}$  と同時に  $\text{Gd}(^{18}\text{O}, xn)$  反応により  $^{169}\text{Hf}(T_{1/2}=3.25 \text{ m})$  を合成し、Rf と Hf の挙動を同時に検討している。また、Ge と Gd の混合標的を用いることにより、 $^{169}\text{Hf}$  と同時に  $\text{Ge}(^{18}\text{O}, xn)$  反応により  $^{85}\text{Zr}(T_{1/2}=7.9 \text{ m})$  を合成し、Zr と Hf の挙動を同時に検討している。このように、Hf を仲介として、Rf、Hf、Zr の相互間の比較している。AIDA は  $\alpha$  線測定まで自動でできるようになっているため、これまでの実験に比べ、格段に操作性が向上している。

結果を簡単に紹介する。まず塩酸系であるが、図 3 に塩酸の濃度に対する陰イオンの吸着性を示す。[4] 図からわかるように、塩酸の濃度とともに、陰イオン交換樹脂への吸着が、 $\text{Rf} > \text{Zr} > \text{Hf}$  の順になっている。このことは、Rf の方がより塩酸濃度が低いときでも、陰イオン (例えば、 $[\text{RfCl}_6]^{2-}$ ) になっている事を示している。すなわち、塩化物イオンとの錯形成の強さが、 $\text{Rf} > \text{Zr} > \text{Hf}$  の順になっているものと考えられる。ちなみに、Th は、この条件では吸着しない。

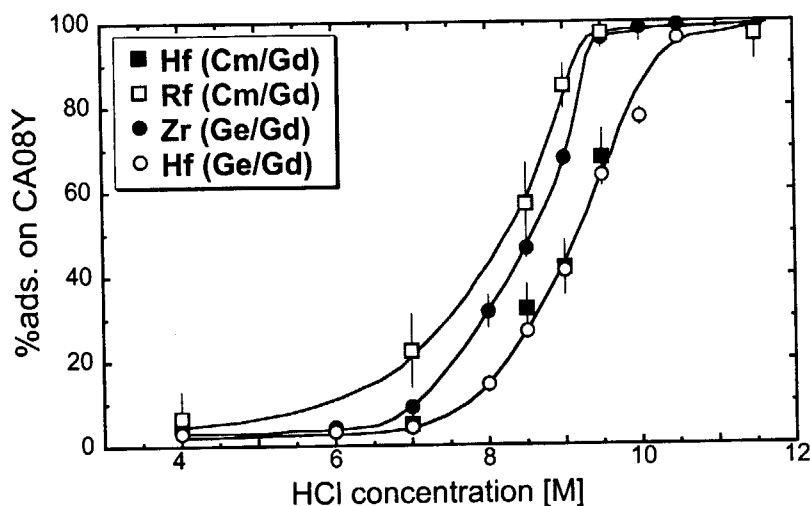


図 3: 塩酸系から陰イオン交換樹脂への吸着挙動

硝酸系での陰イオン交換挙動であるが、予め、 $Zr^{4+}$ 、 $Hf^{4+}$ 、 $Pu^{4+}$ 、及び  $Th^{4+}$  について、off-line で 1 — 13 M 硝酸からの吸着を調べたところ、 $Pu^{4+}$  及び  $Th^{4+}$  は 8 M 硝酸から定量的に吸着するのに対して、 $Zr^{4+}$  と  $Hf^{4+}$  はほとんど吸着しない。従って、この条件で Rf がどのような挙動を示すかを調べることにより、擬似 4 族元素である Pu や Th と類似しているか、それとも 4 族元素である Zr や Hf に類似しているかが分る事になる。on-line 実験を行ったところ、Rf は明らかに Zr や Hf と類似していることが分かった。[4]

一方、フッ酸系からの吸着に関しては、非常に興味ある結果が得られている。フッ酸の濃度に対して分布係数 ( $K_d = [\text{樹脂に吸着した量}]/[\text{溶液中の濃度}]$ , mL/g) を、log-log プロットすると、その傾きから吸着しているイオンの荷電が得られるが、図 4 に示すように、Zr と Hf は -3 であるのに対し、Rf では -2 となっている。すなわち、陰イオン交換樹脂に吸着している化学種は、Zr と Hf では、 $[MF_7]^{3-}$  ( $M = Zr, Hf$ ) であるのに対し、Rf では  $[RfF_6]^{2-}$  となっているものと考えられる。この違いが相対論効果によるものであるかどうかは、詳細な理論計算等更なる検討が必要である。

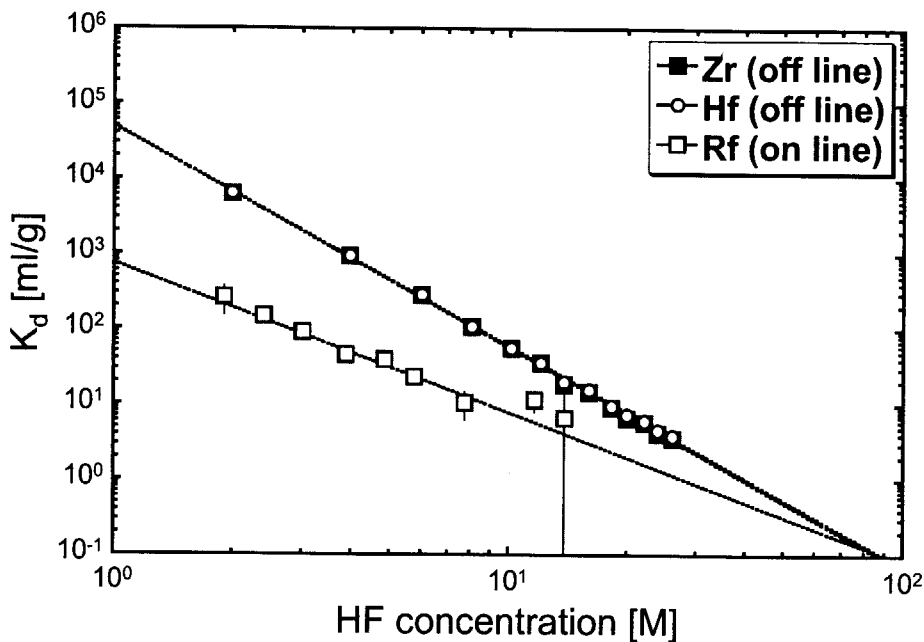


図 4: フッ酸系での陰イオン交換分配係数

## 参考文献

- [1] S. Hofmann, Rep. Prog. Phys. **61**, 639 (1998).
- [2] K. R. Czerwinski et al. Radiochim. Acta **64**, 29 (1994).
- [3] E. Strub et al. Radiochim. Acta **88**, 265 (2000).
- [4] H. Haba et al. J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 143 (2002).



## 2.10 反跳生成核分離装置を用いた重元素合成融合反応機構の研究

Study of effects of nuclear deformation and nuclear shell structure  
on heavy-ion fusion reaction by using JAERI-RMS

S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, K. Satou, C.J. Lin

*Advanced Science Research Center, JAERI*

We have studied the effects of "nuclear deformation" and "nuclear shell structure" on heavy-ion fusion reaction to synthesize heavy elements with the largest possible cross section [1,2,3,4,5]. It is well-known that, in the reactions involving heavy projectile-target combinations, complete fusion was significantly hindered due to the large Coulomb repulsion force. The fusion probability rapidly decreases as the charge product  $Z_p Z_t$  of projectile and target increases beyond about 1800 [6]. This means a compound nucleus is not always formed even if the kinetic energy of projectile is large enough to surmount the fusion barrier. After a large kinetic energy is dumped at touching, two colliding nuclei are likely to re-separate without forming a compound nucleus (referred as quasi-fission process). An additional kinetic energy is needed to pass inside the unconditional fission barrier in the course of fusion process. We therefore considered that the relative distance between the touching point of the colliding nuclei and the fission saddle point of the compound nucleus plays an important role for the reduction of such large fusion hindrance in the massive systems, where the touching point usually locates outside the saddle point.

This situation will be improved by two ideas. One is to use well-deformed nuclei as colliding partners, which have been theoretically propose as "hugging fusion" [7]. The distance between the mass centers at the touching point becomes the shortest when the projectile collides at the side of the deformed nucleus. The most compact configuration like side-to-side collision would lead to high formation probability in the entrance channel. The other idea is to use shell-closed nuclei like in the cold fusion [8], which has an advantage of high survival probability in the exit channel owing to the lowest excitation. An additional advantage could be expected in the entrance channel, that is, two shell closures can merge closely each other with a small kinetic energy dissipation after touching [9,10]. So we experimentally tested the former idea in the reactions of  $^{60,64}\text{Ni} + ^{154}\text{Sm}$  [1,2] and  $^{76}\text{Ge} + ^{150}\text{Nd}$  [3,4], where the target nuclei of  $^{154}\text{Sm}$  and  $^{150}\text{Nd}$  are well deformed. And the later idea was tested in the reactions of  $^{82}\text{Se} + ^{134}\text{Ba}$  and  $^{82}\text{Se} + ^{138}\text{Ba}$  [5], where the nucleus  $^{138}\text{Ba}$  has a closed neutron shell  $N=82$  and the neutron number of  $^{134}\text{Ba}$  is 78, four neutrons less than the closed shell. The projectile nucleus  $^{82}\text{Se}$  is also close to the closed neutron shell  $N=50$ .

In these experiments, to obtain a direct evidence that the heavy projectile really fuses with the deformed target or shell-closed target, the fusion evaporation residues emitted along the beam direction were separated in-flight by the JAERI recoil mass separator (RMS) [11] and identified on the basis of time- and position-correlated alpha-decays. The angular distributions of fission fragments were also measured around the target to obtain the total fusion cross sections. The

measured cross sections were compared with the coupled channel calculation CCDEF [12] for the fusion process (entrance channel) and the statistical model calculation HIVAP [13] for the evaporation process (exit channel). In order to discuss the entrance channel effects, the deexcitation process in the exit channel was simulated in the reactions of  $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$  and  $^{28}\text{Si}+^{198}\text{Pt}$ , where the same compound nuclei  $^{214}\text{Th}$  and  $^{226}\text{U}$  were formed as in the reactions of  $^{60}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$  and  $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$ , respectively, and have enough small  $Z_p Z_t$  value for complete fusion. The details of the experimental procedures and results are described elsewhere [1-5].

As for the nuclear deformation, we clearly observed the orientation effect of the deformed target on the measured excitation functions near the Coulomb barrier [1-4]. In the small  $Z_p Z_t$  reactions of  $^{32}\text{S}+^{182}\text{W}$  and  $^{28}\text{Si}+^{198}\text{Pt}$ , a large fusion enhancement over the prediction of the one-dimensional barrier penetration model was observed. This can be well explained by taking into account static deformations as well as couplings to the inelastic excitations of the colliding nuclei. On the contrary, in the large  $Z_p Z_t$  reactions of  $^{60,64}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$  and  $^{76}\text{Ge}+^{150}\text{Nd}$ , a huge fusion hindrance of about  $10^{-3}$  was observed at energies below the Bass barrier, where only near tip collisions are possible. In higher energy region where near side collisions mainly contribute because of their larger solid angle, there was smaller fusion hindrance. This means that the actual fusion barrier at the tip collision is effectively large and an extra kinetic energy needed to push into the compound nucleus formation. The distance between the mass centers corresponding to the tip collision is expected to be maximum  $R_{\text{tip}}/R_0=1.77$  ( $R_0$  is the radius of the compound nucleus), for example in  $^{64}\text{Ni}+^{154}\text{Sm}$  system [2]. This is well outside the fission saddle position  $R_{\text{saddle}}/R_0 \sim 1.5$ , while in the side collision the minimum distance  $R_{\text{side}}/R_0=1.48$  is very close to the saddle point. This supports the original idea of the hugging fusion that the compact touching configuration in the side collision is more favorable for complete fusion than the elongated configuration in the tip collision. In order to convince the present conclusion, further experimental studies are in progress in more heavier systems like  $^{82}\text{Se}+^{176}\text{Yb}$  and  $^{64}\text{Ni}+^{198}\text{Pt}$  to produce  $^{258}\text{Rf}$  ( $Z=104$ ) and  $^{262}\text{Sg}$  ( $Z=106$ ), respectively, which had been already synthesized in the cold fusion of  $^{50}\text{Ti}+^{208}\text{Pb}$  and  $^{54}\text{Cr}+^{208}\text{Pb}$ .

We also investigated the dependence of the fusion probability on the nuclear structure of colliding partner, especially on the neutron closed shell  $N=82$  [5]. The obtained excitation function of fusion probability were compared with other reported results in  $^{40}\text{Ar}+^{176,180}\text{Hf}$  ( $Z_p Z_t =1296$ ) [14] and  $^{124}\text{Sn}+^{92,96}\text{Zr}$  ( $Z_p Z_t =2000$ ) [15], where the same compound nuclei  $^{216}\text{Th}$  and  $^{220}\text{Th}$  are formed as in the present reactions  $^{82}\text{Se}+^{134,138}\text{Ba}$  ( $Z_p Z_t =1904$ ), respectively. In  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$  system, there was large fusion hindrance below the Bass barrier, which was usually observed in large  $Z_p Z_t$  system like  $^{124}\text{Sn}+^{92}\text{Zr}$ . On the other hand, in the  $^{138}\text{Ba}$  target case of  $N=82$  shell closure, no fusion hindrance was observed, which shows the same trend as in  $^{40}\text{Ar}+^{180}\text{Hf}$  with small  $Z_p Z_t$  enough to completely fuse each other. The present result is consistent with that in  $^{86}\text{Kr}+^{130,136}\text{Xe}$  [16], where the nucleus  $^{136}\text{Xe}$  is  $N=82$  shell closure. Oganessian pointed out an important relation with the fission of Th isotopes, that is, the asymmetric fission is observed for  $^{220}\text{Th}$  and  $^{222}\text{Th}$  but not for  $^{216}\text{Th}$  [16,17]. The projectile and target nuclei in reaction systems  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{136}\text{Xe}$  are close to the asymmetric fission fragments of  $^{220}\text{Th}$  and  $^{222}\text{Th}$ , respectively. The both fission fragments at scission

are spherical and the atomic number of the heavy asymmetric component is concentrated around  $Z_H=54$  with a small charge width of 4.7 (FWHM) [17]. These target-projectile combination makes a compact touching shape and produces a cold compound nucleus because of large negative shell energies of colliding partners. The present result shows that the sub-barrier fusion process of massive reaction system depends on an important role of the target-projectile combination corresponding to the asymmetric fission and the nuclear shell structure.

### Reference

- [1] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, and J. Lu, Phys. Rev. C62, 54603 (2000).
- [2] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, K. Satou, and J. Lu, Phys. Rev. C65, 54608 (2002).
- [3] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, and J. Lu, Phys. Rev. C62, 14602 (2000).
- [4] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, K. Satou, and S.C. Jeong, Phys. Rev. C63, 44610 (2000).
- [5] K. Satou, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, K. Nishio, and S.C. Jeong, Phys. Rev. C65, 54602 (2002).
- [6] A. B. Quint, W. Reisdorf, K.-H. Schmidt, P. Armbruster, F. P. Hessberger, S. Hofmann, J. Keller, G. Münzenberg, H. Stelzer, H.-G. Clerc, W. Morawek, and C.-C. Sahn, Z. Phys. A 346, 119 (1993).
- [7] A. Iwamoto, P. Möller, J.R. Nix, and H. Sagawa, Nucl. Phys. A596, 329 (1996).
- [8] S. Hofmann et al., Z. Phys. A 350, 277 (1995).
- [9] W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Phys. Rev. C 62, 044610 (2000).
- [10] P. Möller, R. Nix, P. Armbruster, S. Hofmann, and G. Münzenberg, Z. Phys. A 359, 251 (1997).
- [11] H. Ikezoe, Y. Nagame, T. Ikuta, S. Hamada, I. Nishinaka, and T. Ohtsuki, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 376, 420 (1996).
- [12] J. Fernandez-Niello, C.H. Dasso, and S. Landowne, Comput. Phys. Commun. 54, 409 (1989).
- [13] W. Reisdorf and M. Schädel, Z. Phys. A 343, 47 (1992).
- [14] H.-G. Clerc, J. G. Keller, C.-C. Sahn, K.-H. Schmidt, H. Schulte, and D. Vermeulen, Nucl. Phys. A419, 571 (1984).
- [15] C.-C. Sahn, H.-G. Clerc, K.-H. Schmidt, W. Reisdorf, P. Armbruster, F. P. Hessberger, J.G. Keller, G. Münzenberg, and D. Vermeulen, Nucl. Phys. A441, 316 (1985).
- [16] Yu. Ts. Oganessian, Heavy Elements and Related New Phenomena, edited by W. Greiner and R.K. Gupta (World Scientific, Singapore, 1999), p.43.
- [17] K.-H. Schmidt, S. Steinhäuser, C. Böckstiegel, A. Grewe, A. Heinz, A. R. Junghans, J. Benlliure, H.-G. Clerc, M. de Jong, J. Müller, M. Pfützner, and B. Voss, Nucl. Phys. A665, 221 (2000).

## 2.11 高速イオンの固体内原子衝突における電子励起効果 Electronic Excitation in Ion-Atom Collision in Solids

寺澤 倫孝

M. Terasawa

姫路工業大学高度産業科学技術研究所

Laboratory of Advanced Science and Technology for Industry

Himeji Institute of Technology

### 1. はじめに

高エネルギーに加速した重イオンで固体物質を照射するとイオンの軌跡に沿って円柱状の欠陥ができる。銅酸化物超伝導体ではこの欠陥をわずか  $10^{10}/\text{cm}^2$  台の密度で導入するだけで、きわめて効果的に磁化率や臨界電流密度を向上することができるため注目されている。また高エネルギーイオンの照射によりスパッタリングや照射損傷が著しく促進されることが報告されている。イオンの固体原子との相互作用は、低エネルギーでは弾性衝突が主要過程であり、固体内では原子のはじき出し、格子欠陥が起きるが、高エネルギーになると非弾性的な電子相互作用が支配的になる。このためイオンは高エネルギーでは基本的には電子励起過程を通して相互作用することになる。一般に電子励起過程は内殻電子励起あるいは電離により代表される過程であり、一時的かつ局所的に原子のイオン化が起きたとしても、周囲の電子により短い時間に緩和されることが想定されるため、なぜ原子のはじき出しを素過程とする格子欠陥、照射損傷、スパッタリングが起きるかが議論となっている。高エネルギーの重イオンの電子相互作用によって固体物質に注入されたエネルギーが原子のはじき出しのエネルギーに転換されるプロセスには、「クーロン爆発」による説と「熱スパイク」によるものとの両論があり議論されている。

また、核融合炉開発、宇宙天体物理学に関連して多価重イオンの原子衝突研究が進められている。多価イオンは従来、高エネルギー加速器で加速したイオンビームを炭素フォイルなどの薄膜を通して電荷ストリッピングを行って、あるいは高電離ガスプラズマ中で得られていたが、近年、電子ビーム型イオン源 EBIS あるいはイオントラップ EBIT が開発され、ほとんど全元素について完全電離イオンがしかも低速でも得られるようになった。多価イオンは固体表面でホローアトム形成などの過程を通して、激しく電子的に相互作用する。このため多価イオンでは低エネルギーにおいても電子励起によって誘起されるスパッタリングが期待される。

### 2. 銅酸化物超伝導体における柱状欠陥

銅酸化物超伝導体  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$  を 3.5 GeV の Xe イオンで照射した後、SQUID で測定した磁化率（磁気履歴ループ）を図 1 に示す。磁化率は照射イオンのフルエンスとともに



顕著に増大し、イオンビームが磁束のピン止めに有効に作用していることがわかる。高エネルギーXeイオンを照射した超伝導体試料には直径約5 nmの円柱状欠陥が形成されることが透過型電子顕微鏡観察により認められ、磁束のトラップとして働くものと理解されている。

筆者らは円柱状欠陥の断面を高分解能電子顕微鏡 FE-TEM(Topcon EM-002BF)で組成分析した結果、円柱中央部でCuの富化、Bi, Srの枯渇が認められた。(図2) このことは円柱状欠陥の形成のメカニズムを示唆するもので興味深い。即ち、高電子励起イオンの通過によりイオン軌道に沿って固体原子の高密度電離が生じる結果、クーロン爆発が起こるものと考えられる。軌道の中心部は衝撃波の発生もあり、大部分の原子が一時的に吹き飛ばされるが、小サイズで移動しやすいCuは緩和過程で中央へ戻るものと理解できる。この観測事実は「熱スパイク」モデルのような準静的過程では説明できない。

### 3. 高エネルギースパッタリング

原研タンデム加速器で加速した80~320 MeVのI及びAuイオンを照射して、C, Cu, Auの薄膜からのスパッタリング(2次イオン収率)を測定した実験結果を図3に示す。このエネルギー領域の照射イオンは10 keV/nm以上の高い電子的阻止能 $S_e$ をもつが、これに対し、核的阻止能 $S_n$ は0.1 keV/nm以下であるため、直接の弾性衝突に関連するスパッタリングの寄与は無視できる。図から2次イオン収率はいずれの薄膜も $S_e$ のほぼ二乗に比例していて、高エネルギー領域ではスパッタリングが電子励起と強い相関をもっていることがわかる。照射イオンによる固体原子の電離は単純には $S_e$ に比例すると考えられるため、スパッタリングがクーロン爆発によって起こるとすれば、電離された原子間の静電的ポテンシャル( $S_e^2$ に比例)依存性を示すことが期待される。実験事実はまさにそれを物語っている。

### 4. 多価イオンスパッタリング

高電離状態の多価イオンによるスパッタリングは電子励起を検証するひとつの手段となることが期待される。筆者らは米国カンザス州立大学の電子ビームイオン源CRYEBISを利用し、電荷数 $q=15\sim 44$ の $Xe^{q+}$ イオンでSi及び各種の金属(Al, Ni, Cu)を衝撃し、2次イオン収率を測定した。多価イオンのもつポテンシャル・エネルギー $E_p$ は多価になるときわめて大きな値になる。例えば $q=22, 33, 49$ では、それぞれ $E_p=5.8, 21.1, 92.0$  keVになり、完全電離の $q=54$ では160 keVに達する。多価イオンは固体内に入射すると急激(10 fs)に低電荷状態あるいは中性になることが報告されており、このことは多価イオンが入射時に持っているポテンシャル・エネルギーはきわめて短時間で消費され、固体原子の励起、電離、スパッタリングなどを起こすものと考えられる。実験結果(図4参照)を要約すると、

①  $q$ の増加とともにスパッタリング収率は顕著に増大する。② 収率はSiでは比較的に緩やかで、単調に増加する。③ 金属では $q$ が低いときは大きな増大は見られないが、 $q=35$ ( $E_p=20$  keV)を越える付近から急激に上昇する。④ Al, Cのスパッタリング収率について、 $Xe^{q+}$ イオンの入射エネルギーを50~1000 keVの間で調べた結果、そのエネルギー依存性は

$S_0$  のエネルギー曲線に近い傾向を示した。

③ に述べた変化は調べた 3 種の金属に共通であり、スパッタリングが基本的には多価イオン自身の特性によることが示唆される。即ち、多価イオンのスパッタリングはイオンの静電的ポテンシャルに起因し、クーロン爆発により起こる現象であると考えられる。20 keV のイオンエネルギーの損失は、10 keV/nm に相当し、上述の酸化物超伝導体において円柱状欠陥が出現するしきいエネルギーとして議論されている値と一致することは興味深い。多価イオンのスパッタリングが酸化物超伝導体における電子励起効果と類似の現象として捉えられることを示している。一方、④ の結果は多価イオンのスパッタリングが電子励起効果を伴って高いスパッタリング収率を示しながらも、核的な弾性衝突過程を併せもつという、協調効果があることを示唆している。このメカニズムの詳細な解明は今後に残された問題である。

#### 5. クーロン爆発の分子動力学計算

多価イオンのスパッタリングがクーロン爆発によるものと考え、 $Xe^{q+} \rightarrow Si$  について分子動力学に基づくシミュレーション計算を行った。前述したように多価イオンはそのポテンシャル・エネルギーをきわめて表面に近い領域で消費する。計算の初期条件としては、このエネルギーが全て固体 Si に与えられ、イオンの入射位置を中心とした半球内に 1 荷の  $Si^+$  をつくるものと仮定し、このイオンがもつポテンシャル・エネルギーが入射  $Xe^{q+}$  イオンのポテンシャル・エネルギーに等しいとして、 $Si^+$  イオンの数および半球の大きさを決める。 $Si^+$  イオン同士は互いの静電的反発力により、半球の外側に駆動される。表面から外へ飛び出す粒子の数をスパッタ率として求める。図 5 は初期の  $Si^+$  イオン数 375 ( $q = 49$ ,  $E_p = 92.0$  keV に対応) の場合で、385 fs 後の表面付近の粒子分布を示す。衝撃波の発生によるクレータの形成と多量の 2 次粒子の放出が認められる。図 6 にスパッタ率の  $E_p$  依存性の計算結果を実験結果とともに示す。ただし、シミュレーション計算は全スパッタ率であり、実験値は 2 次イオン収率であるため、絶対値の直接の比較はできない。図は相対的な  $E_p$  依存性を示すものである。 $E_p$  の上昇とともにスパッタ率が増大する傾向は、シミュレートできたものと判断される。

#### 6. おわりに

原子はじき出しを基本過程とする、イオン照射における格子欠陥、照射損傷、スパッタリングなどが、イオンの直接の弾性衝突ではなく、電子励起過程を通して起こる事例を、銅酸化物超伝導体における柱状欠陥、高エネルギースパッタリング、多価イオンスパッタリングにおいて実験的に調べた。実験結果の解析などを通して、この電子励起効果がイオンビームによって誘起される固体内の電離に基づくクーロン爆発によることを確認した。

#### 謝辞

この研究は、日本原子力研究所東海研究所タンデム加速器、理化学研究所リングサイク

ロトロン，米国カンザス州立大学 CRYEBIS を利用して実施した．それぞれの施設でご指導とご協力を戴いた皆様に謝意を表します．

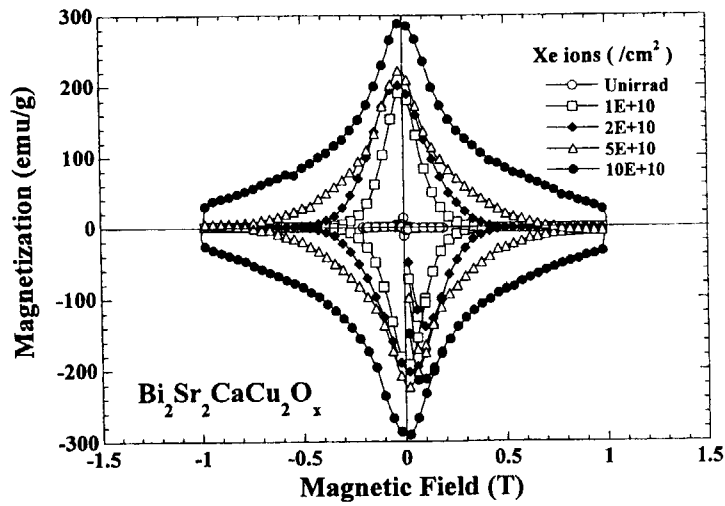


図 1

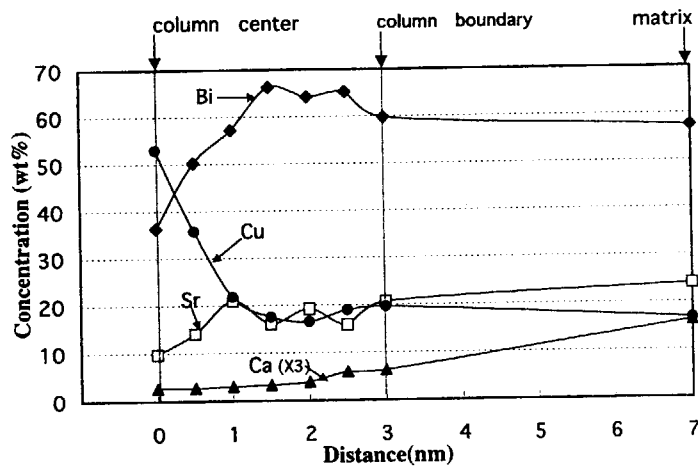


図 2

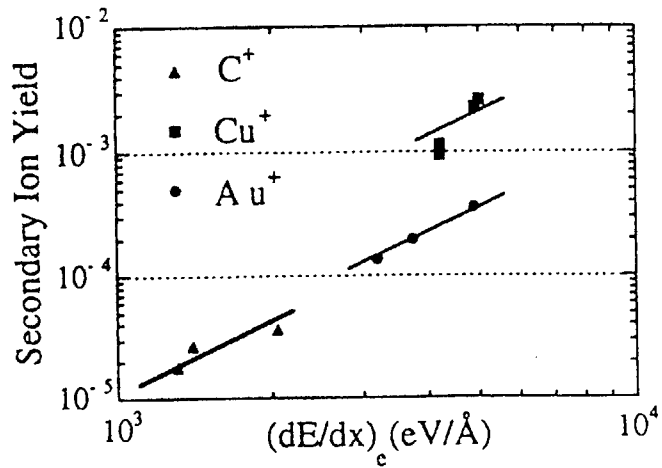


図 3

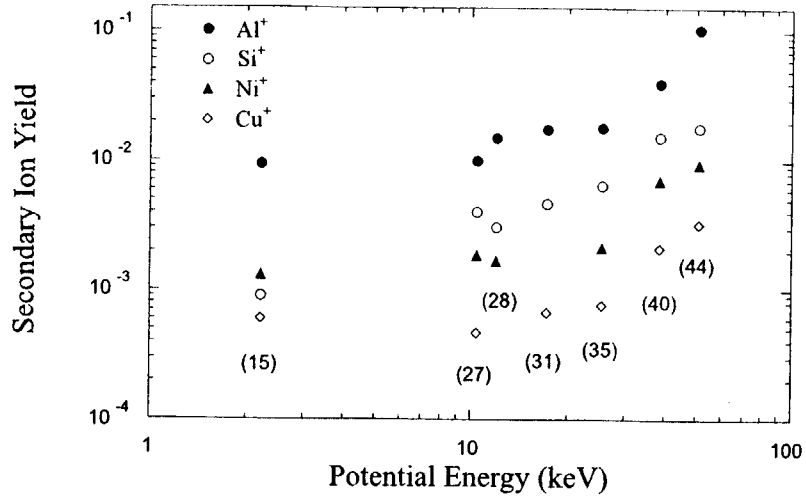


Figure 4

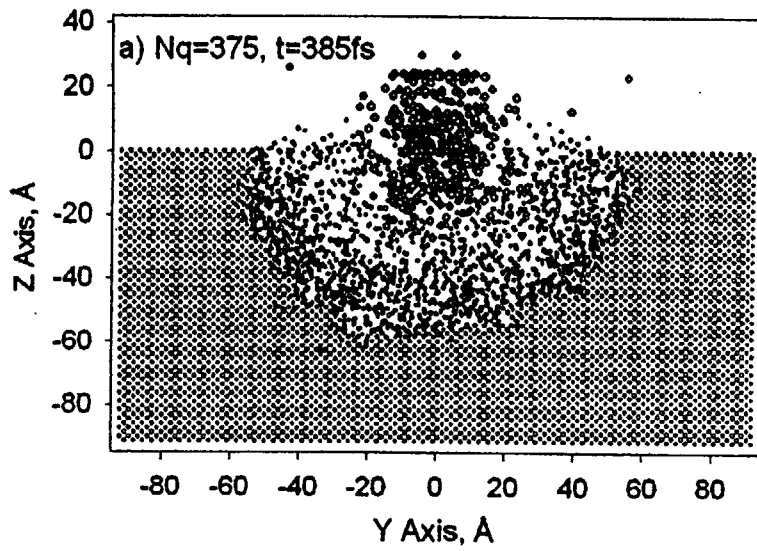


Figure 5

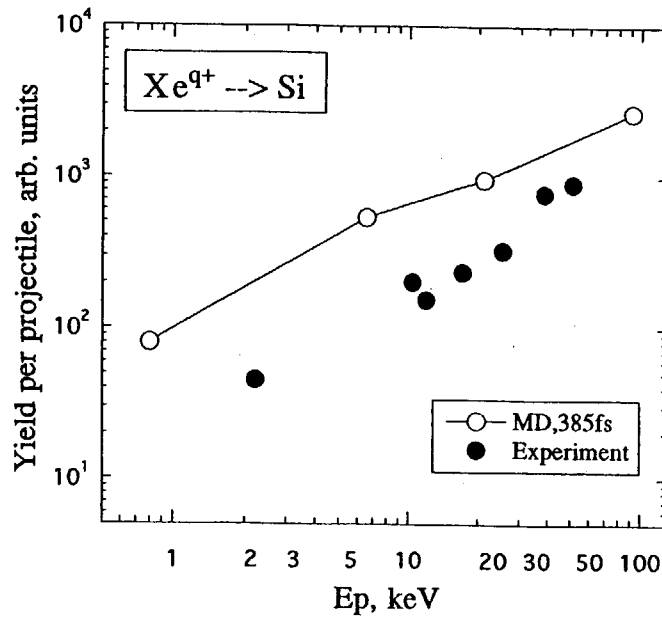


Figure 6



## 2.12 低温でイオン照射した Ni 中の照射欠陥の X 線散漫散乱

前田裕司\*、加藤輝雄\*\*、松本徳真\*\*\*、大家英男\*\*、須貝宏行\*\*\*\*、左高正雄\*\*

\*広島国際学院大 工学部、\*\*原研 物質科学部、\*\*\*原研 関西研 放射光科学研究センター

\*\*\*\*研究炉部

### 1. はじめに

原子炉材料ではカスケードの構造についての研究は重要な研究課題の一つである。この欠陥の構造は不均一な損傷で、中心に高濃度の空孔があり、その外側に格子間原子が散在するモデルが古くから提唱されていて、格子間原子型あるいは空孔型転位ループルの形成を律則すると考えられているが、その構造はいまだに定かでない。それはこの欠陥の構造を調べるためには、欠陥が再配列や移動、消滅しない低温で照射を行い、低温で測定を行う必要があるからである。またこの欠陥は電子顕微鏡では観測が容易ではないほどの大きさである。

本装置はタンデム加速器により、10K 以下の温度で重イオン照射した試料の温度を上げることなく、タンデム棟から研究棟及び約 70km 隔てたつくば市の高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の放射光施設 (PF) に輸送し、10K 以下で X 線回折を行うことを目的として開発したものである。一連の実験の概念を図 1 に示した。実際にタンデム加速器ビームライン H1 に設置し、極低温照射チャンバーに開発した X 線回折用クライオスタットを取り付けて、重イオンを Ni 単結晶に 12K の温度で照射を行ない、低温照射した後、研究棟の X 線散漫散乱測定装置へクライオスタットを移動して低温のまま X 線散漫散乱の測定を行った。低温イオン照射して、低温で X 線測定を行った実験は世界でも例がない。照射チャンバーに X 線が測定できるように改良したクライオスタットを上手く組み合わせて試料の温度を上げることなく照射後 X 線装置に取り付けが可能となった。

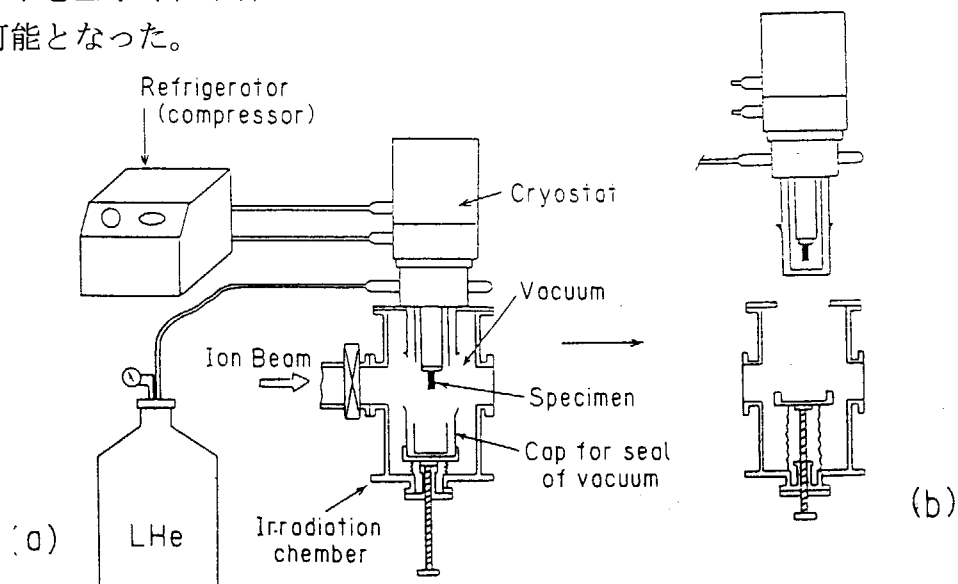


図 1. 照射チャンバーとクライオスタット a) 照射状態, b) 照射後クライオスタットをチャンバーから試料を低温のまま取り外す。

極低温で加速器照射した試料のX線回折実験では照射中及びその後のX線測定はその場測定が困難である。通常は照射チェンバーとX線回折装置がそれぞれ別の場所に設置しているからである。また、照射試料の照射チェンバーから試料を取り外さねばならない。そのとき、試料は極低温から室温を経由してX線装置へ取り付けることとなる。これは技術的に困難である。これを解決するためには試料の着脱を要しない実験方法を探ることが一つの解決法ではある。

本実験方法の概念は図1に示したように試料をX線回折用クライオスタットの下端部に照射試料を固定し、そのまま既設の照射チェンバーに挿入して照射を行う。照射後は本クライオスタットの熱シールドと真空キャップを遠隔操作で装着できる横造とする。このため、照射チェンバーとX線回折クライオスタットの分離が容易になる。依って、本方法で試料の着脱操作がないため、試料の温度を上げることなく照射、輸送及びX線回折測定を1つのクライオスタットで行うことが可能になる。以下に装置の詳細とX線回折について述べる。

## 2. クライオスタットの特徴及び問題点と対策

本クライオスタットの開発、および実験を遂行するために諸問題と対策を下記に述べる。

- (1) イオン照射時における約3Wの試料の除熱が可能  
小型の冷凍機 (0.2 W at 10K) + 液体 He 冷却。
- (2) 照射から輸送時までの約1ヶ月間の冷却には  
冷凍機を稼動して試料を冷却
- (3) 輸送時には液体 He で冷却 (電源なしが有利)。
- (4) 約1週間のX線測定時には冷凍機が有利。
- (5) 重イオンが試料に直接照射できること。  
(クライオスタットの真空キャップと熱シールドはビームを阻止するため照射時では取り外し、照射後には真空中で装着しなければならない)。
- (6) クライオスタットの真空キャップと熱シールドの材料はX線が透過出来るものを用いる。  
カーボンファイバー強化樹脂 (CFRP) を使用。
- (7) X線のゴニオメータへの搭載重量は制限があり、10kg以下とし、小型化した。

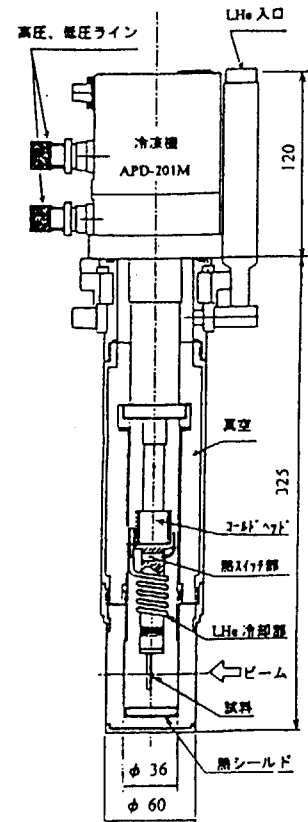


図2 クライオスタット断面図

これらを全て満足させるためには液体 He または小型の He 冷凍機を使用した。しかし、二つの異なった冷却方法を組み込むと、クライオスタットのシステムの熱バランスが不均衡になり、殊に液体 He のみの冷却時に冷凍機からの熱進入が大きいため冷却が不十分になること、および冷却方法を冷凍機に切り替える時に暖気体が循環することで温度上昇が起こることが考えられる。その対策として、図2に示した冷凍機のコールドヘッドと液体 He の冷却部の間に数mmの隔室を設けて熱スイッチの役

割を持たせた。液体 He 冷却時にはこの熱スイッチ部を真空にすることで冷凍機側からの熱進入を極力押さえることができる。冷凍機駆動時には He ガスを封入することで He の熱伝導によって効率よく冷却ができる。即ち、熱スイッチ部の雰囲気操作によって、液体 He または冷凍機の単独冷却および併用冷却ができ、さらには相互の冷却方法の切り替えも容易である。冷却の実施例は照射時には液体 He 冷凍機の併用冷却、照射後から輸送準備までの約一ヶ月間を冷凍機冷却のみ、輸送時には液体 He 冷却により、X線測定時には冷凍機冷却のみで行う。

### 3. 実験及び結果

127 MeV  $I^{+10}$  (iodine) イオンを約 12 K で Ni 単結晶に照射した。照射量は  $5.2 \times 10^{13}$  ions/cm<sup>2</sup> であった。その後 35 K 以下で試料を X 線用クライオスタットにとり付けて X 線測定を 18 K で行った。(200) 反射面の X 線散漫散乱を測定して、散乱強度に対して  $q$  (逆格子点からのずれ) プロットを行い、点状の欠陥を示す  $q-2$  とひずみの多いクラスタ欠陥 (転位等) を示す  $q-4$  の項が現れた。このことは 35 K 以下では照射欠陥 (格子間原子等) は移動する温度ではなく、これはカスケード損傷が形成されていることが考えられる。120 K、200 K、300 K に等時焼鈍を行い、18 K で X 線散漫散乱を測定し、解析の結果は格子間原子型のクラスタは焼鈍温度を上げていくとサイズは 1.5 nm から 2.0 nm に成長していることが分かった。空孔型欠陥は変化しなかった。これらの結果は IBMM2002 (神戸) 国際会議に発表した。

N. Matsumoto, T. Kato, M. Sataka, H. Ohtsuka, H. Sugai and H. Maeta

DEFECT STRUCTURES IN ION IRRADIATED NICKEL AT LOW TEMPERATURE BY X-RAY DIFFUSE SCATTERING IBMM2002 KOBE 2002, 9, 2 (神戸市)

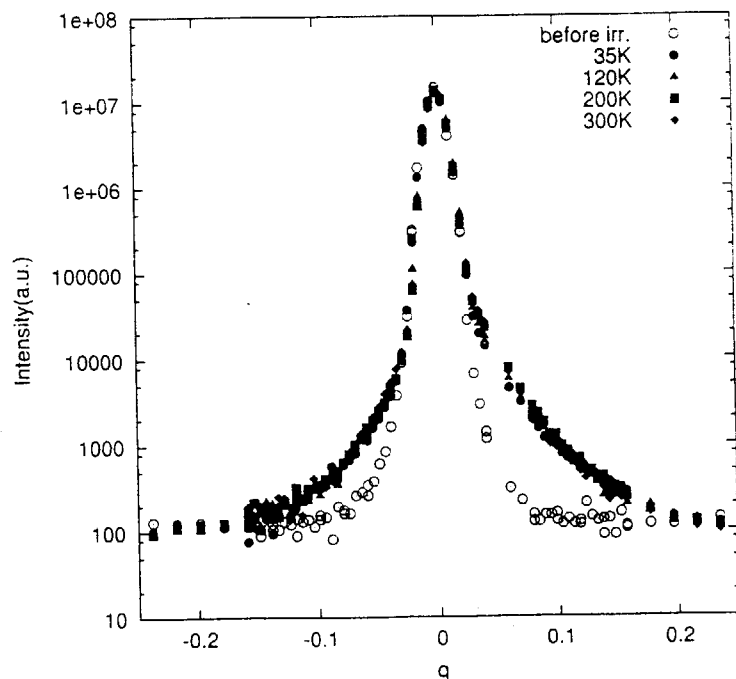


図3 Ni 単結晶にヨウ素 ( $I^+$ ) を 127 MeV で照射した X 線回折 Profile

## 2.13 核分裂で生成する不安定核の崩壊特性の測定

### Measurements of decay properties of unstable nuclei produced in fission

河出 清

名古屋大学大学院工学研究科

K. Kawade

Graduate school of engineering of Nagoya University

#### 1. はじめに

不安定核の崩壊特性の測定を通じて、低エネルギー核構造、原子核の安定性に関する情報が得られる。通常荷電粒子反応で得られる核構造情報は中性子欠損核に限られるが、熱中性子あるいは陽子による核分裂反応を用いると質量数 80~170 領域にある中性子過剰不安定核を生成することができる。中性子過剰不安定核に関する研究は核種の生成手段が限られていることにより研究が遅れている。近い将来、RI ビームを用いた研究が開始されるようになると、より深いレベルの研究が進展するものと期待される。

原子核の崩壊の際放出される、 $\beta$  線・ $\gamma$  線の核分光(崩壊核分光)による核構造研究として、新核種の同定、 $\beta$  崩壊エネルギー、励起状態の寿命、スピンパリティの決定等がある。原子質量は原子核の安定性・性質を反映する基本的な物理量であり、娘核種の質量が分かれば親核の質量は $\beta$  崩壊エネルギーの測定から決定することができる。ここでは、主に不安定核の $\beta$  崩壊エネルギー測定、新核種の同定の結果について報告する。

#### 2. 実験および結果

##### 2.1 中性子過剰核の生成

京大炉では $^{235}\text{U}(n, f)$ 核分裂生成物をオンライン同位体分離器(KUR-ISOL)で迅速分離した。陽子誘起核分裂反応 $^{238}\text{U}(p, f)$ を用いると、 $^{235}\text{U}(n, f)$ で得られる中性子過剰核よりさらに重い核種が生成する。原研タンデム加速器から得られる 16 MeV 陽子ビーム照射により、 $^{166,167,168}\text{Tb}$ 等の新核種探索をJERI-ISOLを用いて行った。

##### 2.2 $\beta$ 崩壊エネルギーの測定

種々提案されている質量公式から予測される半減期は、 $\beta$  崩壊エネルギーに依存するので、新核種の同定に際し、半減期と同時に崩壊エネルギーを決定できれば、より厳しい質量公式の検討ができる。ところが従来は、Ge 検出器を用いた同時計数により、娘核の励起状態に遷移してくる $\beta$  線成分を個々に分離して測定していたため、効率が低い上に励起状態のはっきりした情報のないものは $Q_{\beta}$ 値の決定出来なかった。現状は、新核種はもとよりその近傍の既知核種の多くも半減期の値が報告されているだけである。

図 1 に示すような  $12\text{ cm}^{\phi} \times 10\text{ cm}$  の BGO 検出器 2 個を向かい合わせた、 $\beta$  線と $\gamma$  線をほぼ 100%吸収する $\beta$ ・ $\gamma$ 全吸収型検出器を開発し、測定効率を 100 倍以上向上させ、崩壊エネルギーを約 0.1 MeV の精度で決定した[1]。図 2 から分かるように、励起準位への $\beta$  遷移の経路に関らず最大エネルギーに全部の $\beta$  線が収束するので、励起準位の情報を必要としない。



新核種  $^{166}\text{Tb}$  の半減期の計算値は  $Q_\beta$  をパラメーターとして変化させれば実験値に“合わせ”られるが、 $Q_\beta$  の決定により計算値が合わないことを示した(図 3) (JERI-ISOL)。

$^{144}\text{La}$  の崩壊エネルギーは誤差を超えて 4.3(1)、5.43(12)、5.88(18) MeV という 3 つの値が、しかも異なる崩壊図式に基いて報告されていた(図 4)。本検出器を用いて 5.54(10) MeV と決定でき、(A) の崩壊図式の値が測定値に近いことを示した[2] (KUR-ISOL)。

### 2.3 新核種の同定

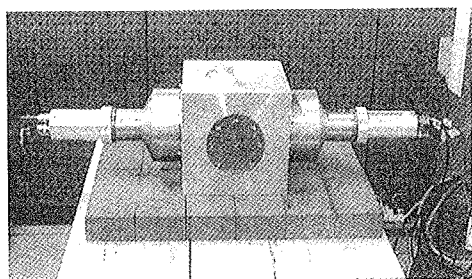
$^{238}\text{U}(p, f)$  生成物を JAERI-ISOL により迅速分離し、これまでに新核種  $^{166,167,168}\text{Tb}$ 、 $^{165,166}\text{Gd}$ 、 $^{161,162}\text{Sm}$ 、 $^{159}\text{Pm}$  の同定を行った。 $^{166,168}\text{Tb}$  から  $^{166,168}\text{Dy}$  への崩壊から  $^{164}\text{Dy}$  の第 1 励起準位が周囲の核種より低いという異常が明らかになった(図 5)[3]。

### 3. 今後

$^{235}\text{U}(n, f)$ 、 $^{238}\text{U}(p, f)$  より得られる中性子過剰核の崩壊核分光をさらに進めるには、 $^{235}\text{U}$  ターゲットを 1 mg 程度の  $^{249}\text{Cf}$ 、 $^{251}\text{Cf}$  にかえることにより質量数 180 付近までの未知原子核の研究が十分可能である(図 6、表 1)。現在の京大炉 ISOL システムのターゲット部分のみを Cf に変えれば研究の展開が可能である。 $\beta$  線検出器として直径約 20 cm 程度の大型貫通型 Ge 検出器を製作すれば、BGO より分解能が数 10 倍良く数 keV 程度で決定できるものと期待される。テストとして直径 8.5 cm の貫通型 Ge 検出器の特性を測定中である(図 7)。

### Reference

- 1) M. Shibata, Y. Kojima, H. Uno, K. Kawade, A. Taniguchi, Y. Kawase, S. Ichikawa, F. Maekawa and Y. Ikeda, Nucl. Instr. Meth. A459, 581-585 (2001)
- 2) M. Shibata, T. Shindou, A. Taniguchi, Y. Kojima, K. Kawade, S. Ichikawa, Y. Kawase; J. Phys. Soc. Japan, 71, 1401-1402 (2002)
- 3) M. Asai, S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Sakama, M. Shibata, Y. Kojima, A. Osa, I. Nishinaka, Y. Nagame, K. Kawade, T. Tachibana; Phys. Rev. C 59 (1999)



Twin BGO (12cm<sup>t</sup> × 10cm<sup>t</sup>)

図 1 BGO  $\beta$ ・ $\gamma$  全吸収型検出器の写真

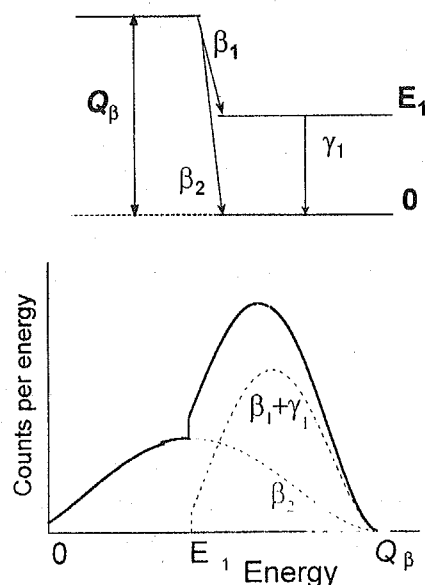


図 2  $\beta$ ・ $\gamma$  サムによる  $Q_\beta$  測定の実理図

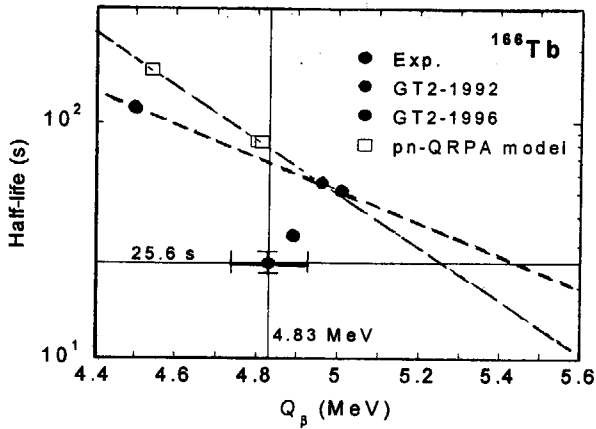


図3  $T_{1/2}$  と  $Q_{\beta}$  値同時決定の効果

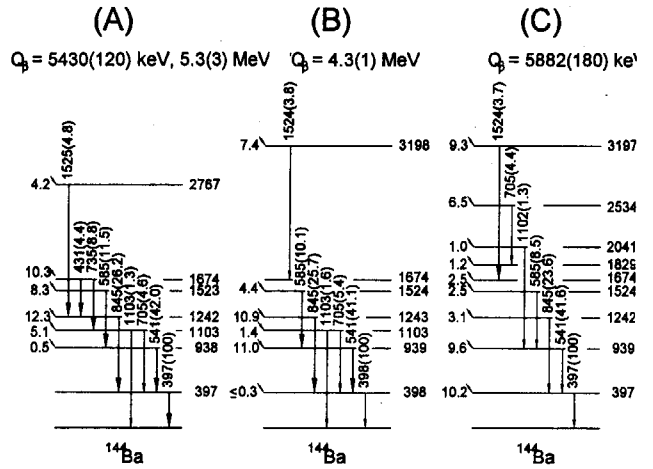


図4  $^{144}\text{La}$  の  $Q_{\beta}$  値の報告値

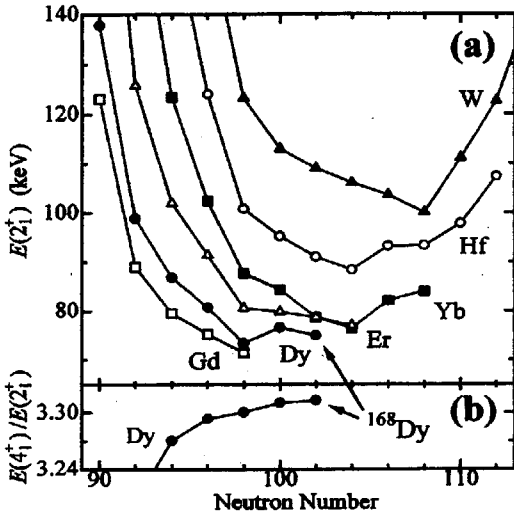


図5  $^{166,168}\text{Dy}$  の第1励起準位

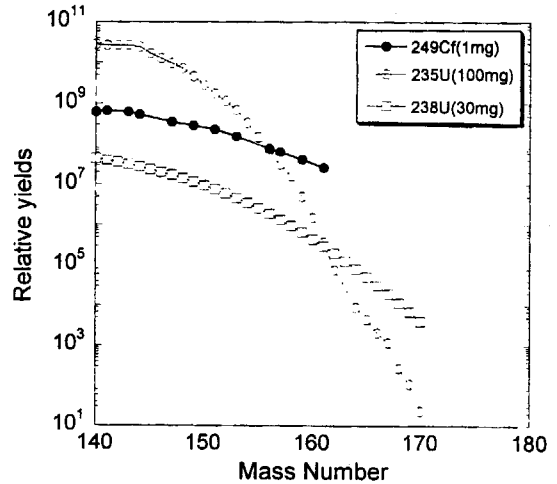


図6  $^{249}\text{Cf}(n,f)$ ,  $^{235}\text{U}(n,f)$ ,  $^{238}\text{U}(p,f)$  の核分裂収率

表1 核分裂生成用試料の性質

Target	$\sigma_f$ (b)	$T_{1/2}$ (y)	Weight	Activity(Bq)
$^{235}\text{U}$	584	$7.04 \times 10^8$	100mg	$8.0 \times 10^3$ (0.22 $\mu\text{Ci}$ )
$^{239}\text{Pu}$	752	$2.41 \times 10^4$	10mg	$2.3 \times 10^8$ (6.2mCi)
$^{249}\text{Cf}$	1660	351	1mg	$1.5 \times 10^8$ (4.1mCi)
$^{251}\text{Cf}$	4300	898	1mg	$5.9 \times 10^9$ (1.6mCi)
$^{245}\text{Cm}$	2100	8500	1mg	$6.3 \times 10^6$ (0.17mCi)
$^{247}\text{Cm}$	82	$1.56 \times 10^7$	100mg	$3.4 \times 10^5$ (9.3 $\mu\text{Ci}$ )
$^{252}\text{Cf}$	3.11%(s.f.)	2.65	200 $\mu\text{g}$	$4.0 \times 10^9$ (0.11Ci)
$^{238}\text{U}$	(p,f)	$4.468 \times 10^9$	30mg	16MeV, 3 $\mu\text{A}$

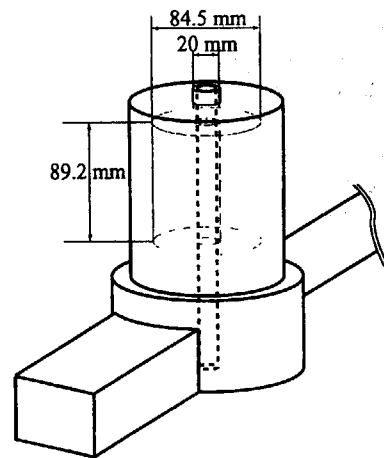


図7 試作した 85 mm  $\phi$  貫通型 Ge 検出器



## 2.14 深部非弾性散乱を用いた二重閉殻 $^{68}\text{Ni}$ 近傍の核構造

石井哲朗

日本原子力研究所 先端基礎研究センター

### 1. はじめに

原子核構造を研究する上で、魔法数—閉殻—がどこに存在するかということは決定的に重要である。 $\text{Ni}$  原子核は陽子数が 28 で、安定核近傍では閉殻になっていることは良く知られている。28 の魔法数は、 $f_{7/2}$  と  $f_{5/2}$  軌道が原子核特有の大きなスピン・軌道相互作用によって分離したことにより生じた魔法数である。この  $f_{7/2}$  と  $f_{5/2}$  軌道の分離が次に現れるのは 114 で、陽子数 114 の超重元素が周囲の元素よりも安定であると考えられてきた要因となっている。非常に中性子過剰な  $^{78}\text{Ni}(N=50)$  では、中性子も閉核の二重閉殻になると予測され、宇宙での  $r$  過程による元素合成に重要な役割を果たしていると考えられる。しかし現在の実験技術では、 $^{78}\text{Ni}$  近傍の原子核は十分な収量が得られず、本格的な核構造の研究ができるまでには、もうしばらく時間を要すると思われる。40 という数は、調和振動子のポテンシャルでは魔法数である。原子核のポテンシャルにおいては必ずしも魔法数ではないが、閉殻の特性を留めていることがある。例えば  $^{90}\text{Zr}(Z=40, N=50)$  では閉核の特性が現れるが、 $^{80}\text{Zr}$  は典型的な変形核で閉核の性質は見えない。それでは、 $N=40$  の  $^{68}\text{Ni}$  ではどうであろうか？

$^{68}\text{Ni}$  近傍の中性子過剰な原子核を生成するためには、核分裂反応では収率が小さいために、本研究で用いたような重イオンビームを用いた深部非弾性散乱や、さらに高エネルギービームを用いた核破碎反応のような核反応を必要とする。しかし、これらの核反応では非常に多くの核種が生成されるために、核反応直後の  $\gamma$  線を測定するインビーム  $\gamma$  線分光実験は、最近の大型の多重  $\gamma$  線検出器をもってしても困難である。我々は「アイソマー測定器 (isomer-scope)」と名づけた装置を開発したことにより、ナノ秒以上の寿命をもつ励起状態から放出される  $\gamma$  線を極めて感度よく測定することに成功し、中性子過剰  $\text{Ni}$  領域の核構造研究を大きく進展させた。

### 2. アイソマー測定器

アイソマー測定器 ([1,5]) は図 1 に示すように、タングステン  $\gamma$  線遮蔽体、 $\text{Si } \Delta E$ -E 検出器、 $\text{Ge}$  検出器より構成する。深部非弾性散乱 (DIC) で生じたビーム様分裂片 (PLF) がターゲットから  $\text{Si}$  検出器に到達する時間は約 1.5ns であり、約 1ns 以上の寿命を持つ励起状態から放出される  $\gamma$  線が測定対象となる。即発ガンマ線はタングステン遮蔽体で吸収され  $\text{Ge}$  検出器に入射しない。原子核では、閉殻近傍に多数のアイソマーが存在することが予測されるので、この測定器は  $\text{Ni}$  領域の研究に特に有効である。

DIC で生じた PLF の大半は、グレージング角近傍からやや前方に放出される。 $^{76}\text{Ge}(8\text{MeV}/A)+^{198}\text{Pt}$  の系ではグレージング角 35 度に対し、 $\Delta E$ - $\text{Si}$  検出器は 21-35 度の範囲を覆っている。前方では弾性散乱されたビームが多くなるために、21 度より前方に散乱された粒子は  $\text{Si}$  検出器に入射しないようにアパーチャーを取り付けてある。このセットアップで、弾性散乱されたビームは PLF に対し約 1 桁多く入射する。

$\text{Si}$ -E 検出器は直径 100mm の円環型で、表面障壁型のものを自作して使用している。 $\text{Si}$ -E 検出器は、入射粒子により損傷を受け、漏れ電流が徐々に増加する。約 200 $\mu\text{A}$  までは PLF のエネルギースペクトルに大きな変化は見られない。この漏れ電流におい

でも Si 検出器が作動するように、高電圧のフィルター抵抗などは配慮してある。通常約 2 日の使用で、新しい Si-E 検出器に交換する。

Si- $\Delta E$  検出器のエネルギー分解能は重要である。分解能がよければ E- $\Delta E$  プロット上で、各元素は明瞭に分離される。 $\Delta E$  検出器は 20 $\mu\text{m}$  の厚みで、エネルギー分解能を主に決定するのは厚みの一様性である。市販品の  $\Delta E$  検出器では満足のいく分解能が得られなかったため、20 $\mu\text{m}$  の Si ウエーハーを購入し、厚みの一様性の優れたウエーハーを選択した上で、自作し実験に用いている。現在得られている分解能は約 3.5% 程度である。 $\Delta Z=1$  に対し約 5% であるので、原子番号に関しては問題なく分離できる。さらに E- $\Delta E$  分布を解析することにより、質量数の識別も可能となった。E- $\Delta E$  分布は、 $E > 200\text{MeV}$  領域ではほぼ直線上にあるので、この線に平行に等間隔にウィンドウを開き ( $\Delta E^*$ )、ウィンドウごとに  $\gamma$  線の強度を求める。Cu の原子核に対し、その分布を示したものが図 2-1 である。それぞれの分布の中心を質量数に対してプロットしたものが図 2-2 である。この解析により、全く未知の  $\gamma$  線カスケードに対しても核種を同定することが可能となり、 $^{68,70}\text{Cu}$  の新アイソマーの発見につながった。

### Isomer-scope

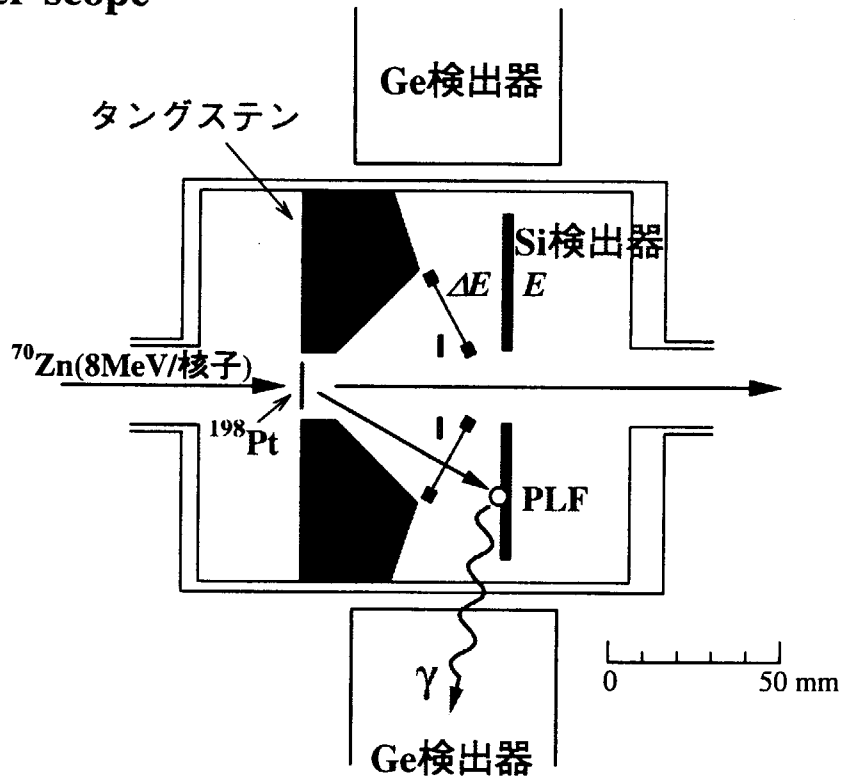


図1 アイソマー測定器の概要図

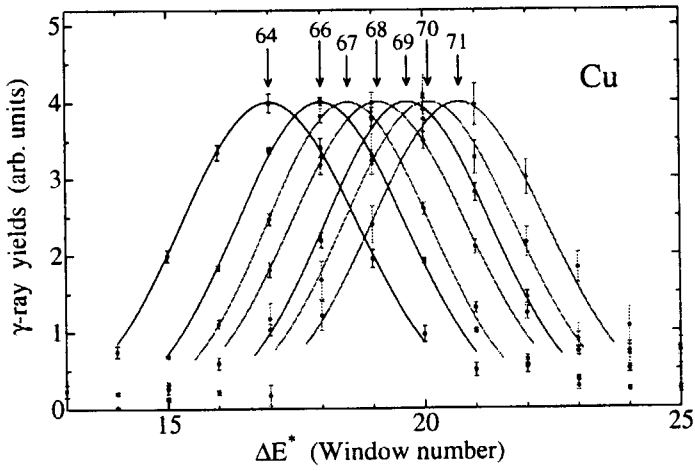


図 2-1  
Cu 同位元素の  
 $\Delta E^*$  の分布

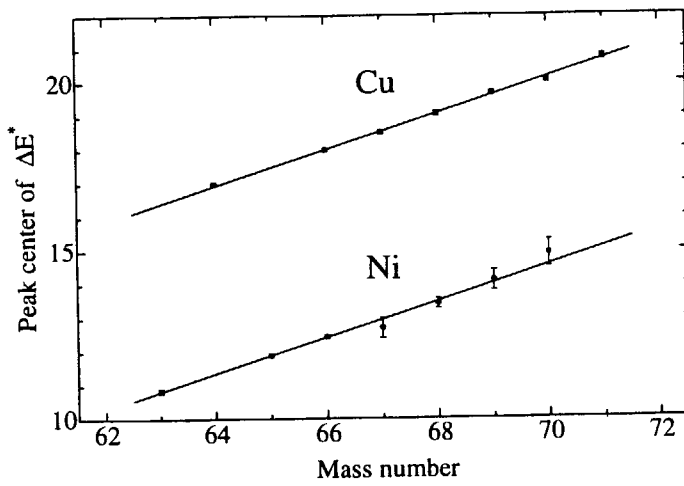


図 2-2  
上図に示した分布の  
中心と質量数の関係

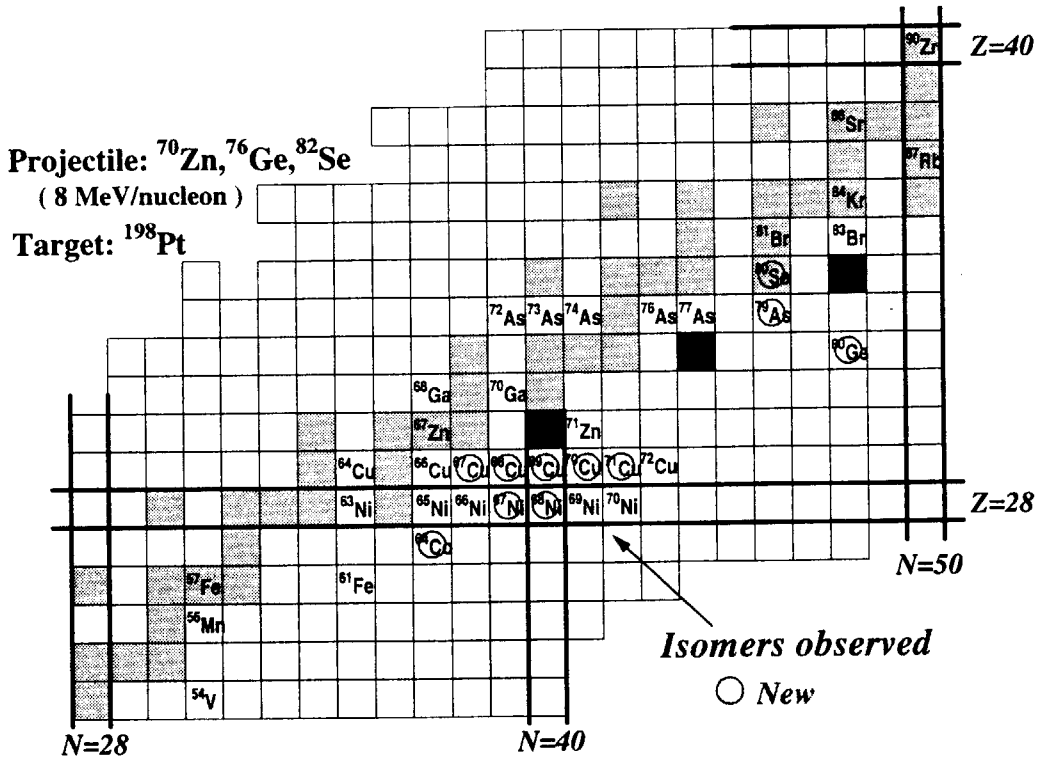


図 3 アイソマー測定器で観測されたアイソマー

### 3. 中性子過剰 Ni 領域の核構造

アイソマー測定器を用いて、これまでに観測されたアイソマーを図 3 に示す。丸で囲んだ原子核のアイソマーは、我々が見つけたものである。これらの多くはすでに論文で発表しているの、詳しくはそちらを参照されたい[2-7]。ここでは  $^{68}\text{Ni}$  と  $^{71}\text{Cu}$  について紹介する。

$^{68}\text{Ni}$  には  $8^+$  のアイソマーを発見した。これは、 $p_{1/2}$  軌道の中性子 2 つが  $g_{9/2}$  軌道に励起した状態である。図 4 に励起準位図を示した。この準位図は、エネルギーが高くなるにつれて準位間隔が狭くなる閉殻近傍に特有な構造を持っている。 $^{68}\text{Ni}$  の準位は  $^{90}\text{Zr}$  の準位と非常に良く似た構造をしており、 $^{68}\text{Ni}$  も  $^{90}\text{Zr}$  と同様な二重閉殻の性質を持つと考えられる。

$^{68}\text{Ni}$  近傍の原子核の  $^{69,70,71}\text{Cu}$  においても、 $^{68}\text{Ni}$  の励起準位と似たスペクトルを観測した。図 5 には  $^{71}\text{Cu}$  の励起準位図を示した。この準位が  $^{68}\text{Ni}$  を不活性な芯にとった殻模型計算で再現されるかどうかを調べた。最も小さなモデル空間  $vg_{9/2}^2\pi p_{3/2}$  をとり、2 体の残留相互作用には隣接核の実験値を採用した。すなわち、 $vg_{9/2}^2$  には  $^{70}\text{Ni}$  の、 $\pi p_{3/2}vg_{9/2}$  には  $^{70}\text{Cu}$  のエネルギー準位を用いた。図 5 に示すように、計算結果は実験値をよく再現している。 $^{71}\text{Cu}$  の  $19/2^-$  状態のような  $j^2j'$  型のアイソマーでは、最大スピンの準位が下がり、非常に長い寿命になることが多い。 $^{71}\text{Cu}$  と類似核の  $^{93}\text{Mo}$  では、 $21/2^+$  が  $17/2^+$  よりも下にくるために 6.9hr のアイソマーになっている。 $^{93}\text{Mo}$  に関して  $^{90}\text{Zr}$  を芯にとり同様の計算を行ったが、非常によく再現する。このような殻模型の計算法は、二重閉殻近くの原子核に対しては非常に精度が高く、十分な予言能力をもつ。

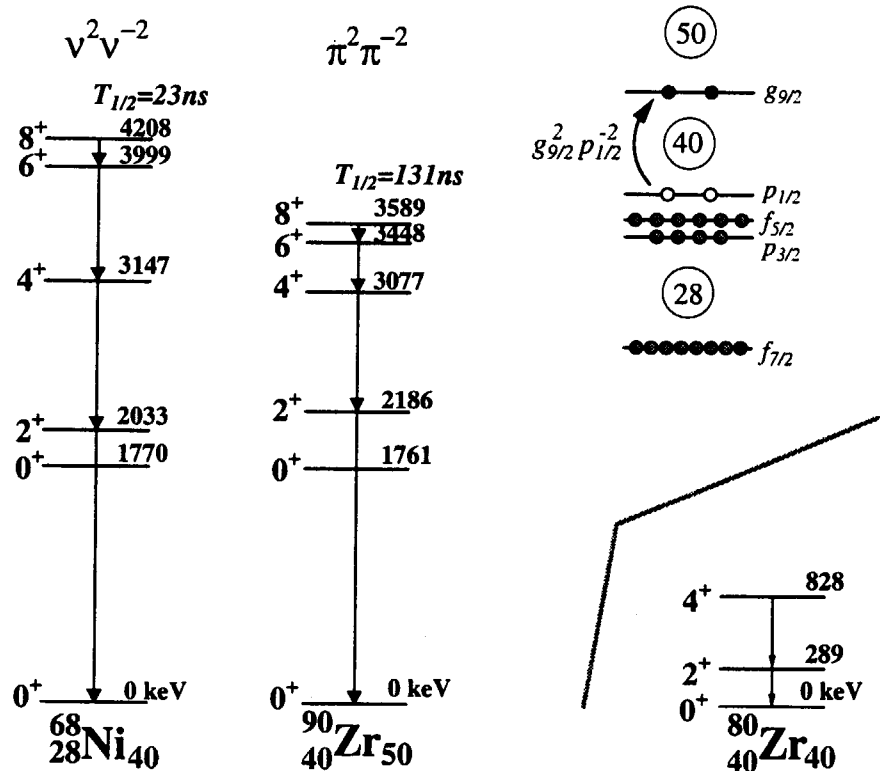


図 4  $^{68}\text{Ni}$  の  $8^+$  アイソマーとその崩壊図  
 $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{80}\text{Zr}$  の励起準位図も比較のために示す。

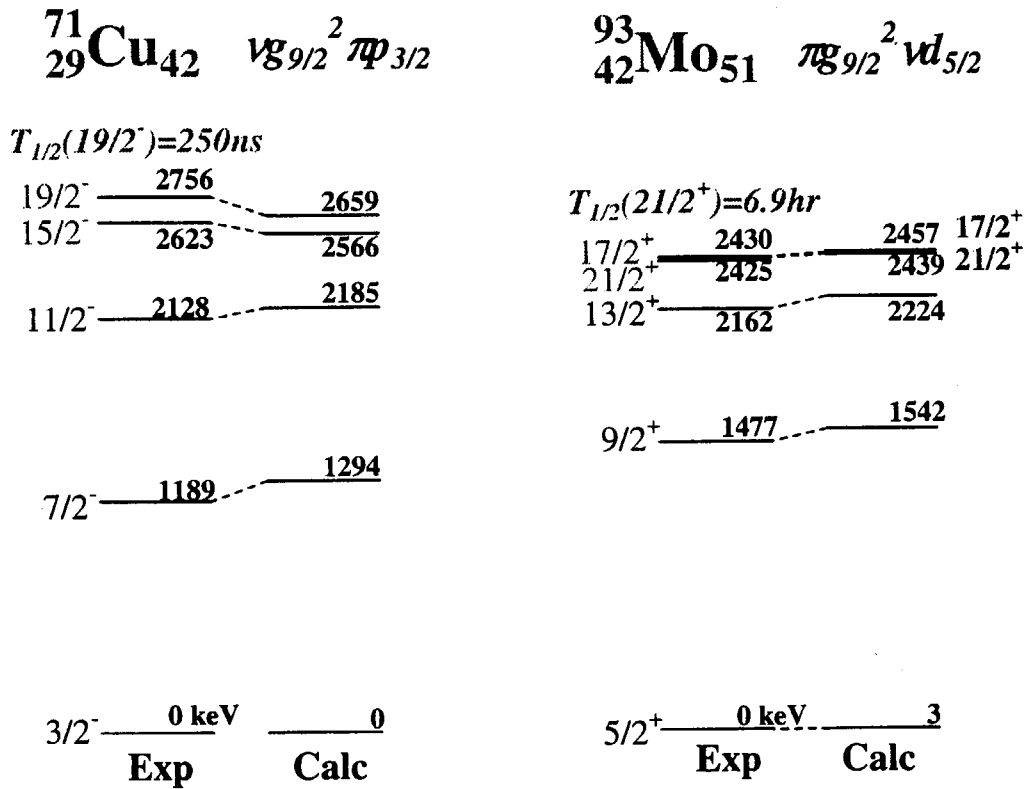


図5  ${}^{71}\text{Cu}$  の  $19/2^-$ アイソマーの崩壊図と殻模型計算結果  
類似核の  ${}^{93}\text{Mo}$  の  $21/2^+$ アイソマーの崩壊図も示す。

#### 4. まとめ

タンデムブーサー加速器の重イオンビームを用いた深部非弾性散乱により中性子過剰のNi領域の原子核を生成し、アイソマー測定器を用いることにより、極めて高感度な $\gamma$ 線分光を可能にした。この領域で、二重閉殻 ${}^{68}\text{Ni}$ のアイソマーをはじめとして多くのアイソマーを発見し、殻模型を基に核構造を解明した。今後 ${}^{48}\text{Ca}$ ビームを用いてN=28近傍の核構造を研究する予定である。

#### References

- [1] T. Ishii et al., Nucl. Instr. and Methods A **395**, 210 (1997).
- [2] I. Hossain et al., Phys. Rev. C **58**, 1318(1998).
- [3] T. Ishii et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 4100(1998).
- [4] A. Makishima et al., Phys. Rev. C **59**, R2331(1999).
- [5] T. Ishii et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 39(2000).
- [6] M. Asai et al., Phys. Rev. C **62**, 054313 (2000).
- [7] T. Ishii et al., Eur. Phys. J. A **13**, 15(2002).



## 2.15 不安定核をプローブとした物性研究 CONDENSED MATTER STUDIES WITH RADIOACTIVE ION BEAMS

旭 耕一郎<sup>1,2</sup>、三好 永哲<sup>1,2</sup>、島田 健司<sup>1,2</sup>、伊藤 孝<sup>1</sup>、小林 義男<sup>2</sup>、  
上野 秀樹<sup>2</sup>、村田 次郎<sup>2,§</sup>、佐藤 渉<sup>2,#</sup>、渡邊 寛<sup>2</sup>、吉見 彰洋<sup>2</sup>

<sup>1</sup>東工大、<sup>2</sup>理研

K. ASAH<sup>1,2</sup>, H. MIYOSHI<sup>1,2</sup>, K. SHIMADA<sup>1,2</sup>, T. ITOH<sup>1</sup>, Y. KOBAYASHI<sup>2</sup>,  
H. UENO<sup>2</sup>, J. MURATA<sup>2,§</sup>, W. SATO<sup>2,#</sup>, H. WATANABE<sup>2</sup>, A. YOSHIMI<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Department of Physics, Tokyo Institute of Technology

<sup>2</sup>RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research)

### §1. はじめに

20 世紀の最後の 10 年は、その前の時期から登場していた「不安定核ビーム」が、強力な実験手段としての発展を遂げ実際に世界の有力な研究機関によって採用され、核物理における新しい学問領域を形成した時期であった。今世紀にはいってこれらの施設はさらに広範囲かつ高強度の不安定核ビームの供給を目指して新規計画を打ち出している。このような状況から、「不安定核ビーム」はもはや核物理学の道具であるにとどまらず、これを物質科学や生物学など他分野の実験手段として利用することが十分現実的になりつつあるといえよう。約 3 年後に完成を控えた理研の新しい不安定核ビーム施設「RI ビームファクトリー」においても、不安定核ビームを物質構造・ダイナミクスプローブとして利用することを目指して準備を開始している[1]。

### §2. 物質内プローブとしての不安定核

スピンを持った不安定核が固体・液体やその表面・界面に埋め込まれると、そこに働く内部磁場や電場勾配とその時間的变化に応じて核スピンは回転、緩和、外部振動磁場との共鳴、等の現象を示し、これらの様子は放出されるベータ線、ガンマ線等の角度分布の変化から知ることができる。図 1 に代表的な手法を示す。

これら不安定核をプローブとする手法はこれまでも低エネルギー加速器で生成した放射性核を用いて利用されてきておりその特徴は「物質内のきわめて局所的な構造・ダイナミクスを高感度に探ることができる」ことであるが、同時にこのことは「得られる情報が局所的すぎて物性物理の観点から興味のある情報に成りえていない」という欠点にもなっている。また目的の放射性核種以外にも大量の粒子が同時に試料をたたき結果 Radiation damage の問題が付きまとっていた。新時代の不安定核プロ

<sup>§</sup>現在の所属： 立教大学理学部物理学科

<sup>#</sup>現在の所属： 大阪大学大学院理学研究科化学専攻



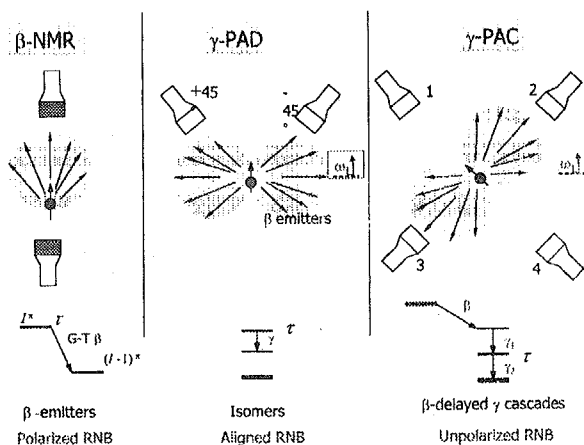


図1. 不安定核をプローブとする実験手法

ープは、i)生成時の一次粒子や同時発生する他核種を分離して目的の核種のみを「ビーム」として試料に導入することによる Radiation damage の回避、ii)超低エネルギー化や試料の微細加工の途中に *in situ* 導入によって表面・界面やナノ構造の特定位置に埋め込む（局所性を積極的に使う）、iii)広範かつ高強度の不安定核ビームを生かしてこれまで適当な不安定核プローブのなかった元素についての研究を開拓する、等々をめざす。

§3. 現在の施設での研究

理研の現有 RI ビーム施設（リングサイクロトロン + 破砕片分離装置 RIPS）を用いて現在進めている研究について紹介する。図2 は入射核破砕反応によって生成した不安定核  $^{19}\text{O}$  ビームを用いた

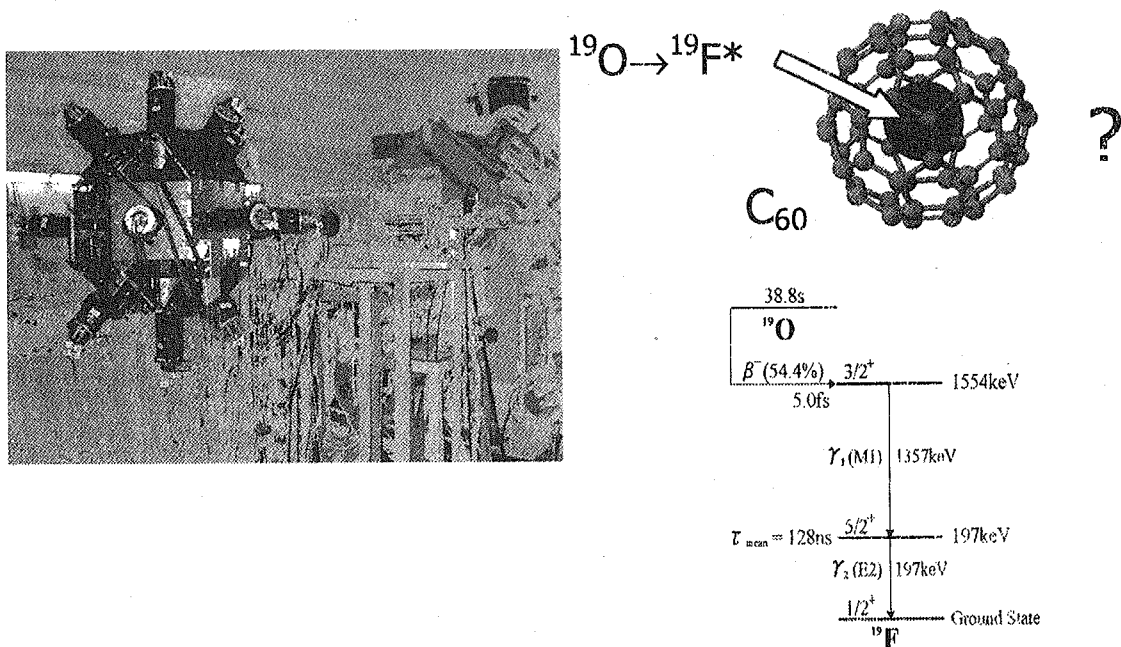


図2. 不安定核  $^{19}\text{O}$  ビームを用いた  $\text{C}_{60}$  フラーレン中の  $^{19}\text{F}$  の位置の研究

フラーレン  $C_{60}$  中の F 原子がとる位置についての研究[2]を示している。F 原子を直接入れる実験はすでにあり、F は  $C_{60}$  の中にははならず外に C-F 結合を形成することがわかっているが、Gaussian 98 コードによる半経験的計算を行うと  $C_{60}+F$  系は上述の外つき型のほか F が中性原子として  $C_{60}$  の中心に収まる configuration もエネルギー的に安定であることが示唆され、このような F 原子内包フラーレンの探索は興味深い。現在 gamma-ray perturbed angular correlation ( $\gamma$ -PAC) 実験のデータを解析中である。

Ib 型ダイヤモンドは 1 ppm 程度の N 原子を不純物として含み、ESR の観測から N は C 位置に置き換わってその余分な電子を隣接 C とのボンドの中点位置に持っていることが示唆される[3]。このことから、ダイヤモンドに N 核をインプラントするとすぐそばの電子との超微細相互作用を用いて N 核スピンを制御し、また電子のレーザー励起後の発光強度から N 核スピンの歳差位相を検出できるものと期待される。これは単一核スピンの操作と観測が可能であることを意味し、量子論理素子への応用の観点から極めて興味深い。現在、 $^{17}\text{N}$  核のベータ崩壊を利用して Ib 型ダイヤモンド中の N 核に働く超微細相互作用を調べるため、ESR 系、レーザー系、 $\beta$ -NMR 系の準備を進めている。

#### §4. RI ビームファクトリーに向けて

現在理研において建設が進められている不安定核ビーム施設 (RI ビームファクトリー; RIBF) では、現有の  $K=540$  リングサイクロトロン (RRC) の後段に 2 段のサイクロトロン (IRC 及び SRC) が加えられる。特に不安定核を物質中にとめてプローブとして使う立場からは、IRC までで得られる広範な  $Z$  数にわたる核子あたりのエネルギー  $E/A \sim 100$  MeV の大強度ビームが極めて有用である。そこで、IRC からのビームを振り分けマグネットによって SRC 以降の実験と同時進行で取り出し、現有 RIPS へと移送する「戻しビームライン」計画を策定中である[4]。これによってこれまで質量数 30 程度までに限られていた不安定核ビームを、広範な  $Z$  数にわたり、停止して利用するのに適したエネルギーでしかも大強度、豊富な利用時間で得られる可能性が開かれる。さらに、現有 RIPS には放射線シールドを施し、実験者と不安定核ビームが共存できる実験室を実現するための検討を始めている。不安定核ビームの物性研究への利用はこのような条件が整ってこそ、強力に進められるものと思われる。外部の核プローブ物性ユーザーにも開かれた施設として、ぜひ実現したいと願っている。

#### References

- [1] K. Asahi, Y. Kobayashi, H. Ueno, A. Yoshimi, W. Sato, H. Watanabe, H. Miyoshi, D. Kameda, *Analytical Sciences* 17 Supplement, i613 (2001).
- [2] W. Sato, H. Ueno, H. Watanabe, H. Ogawa, H. Miyoshi, N. Imai, A. Yoshimi, K. Yoneda, D. Kameda, Y. Kobayashi, and K. Asahi, *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 255, 183 (2003)
- [3] E.C. Reynhardt and G.L. High, *Prog. Nucl. Mag. Res. Spect.* 38, 37 (2001).
- [4] H. Ueno and K. Asahi, *Proc. RIKEN Symposium on Condensed Matter Studies with Radioactive Ion Beams*, February 2002, Wako-shi, Saitama, Japan, pp. 54.



## 2.16 DEPTH-DEPENDENT DAMAGES IN Al-Mg OXIDES IRRADIATED WITH ENERGETIC IODINE IONS

重イオン照射した Al-Mg 酸化物の電子励起による損傷

T. ARUGA, Y. KATANO and T. OHMICHII

有賀武夫、片野吉男、大道敏彦

Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute,  
原研.物質科学研究部

### 1. Introduction

In the studies investigating changes brought about in the near surface region of materials, amorphization behaviors of ceramic materials irradiated with highly energetic heavy ions have recently been paid a lot of attentions, especially to understand amorphization mechanisms due to high energy electronic excitations [1,2]. We have reported that a polycrystalline aluminum oxide ( $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), which is known to be stable against a nuclear energy deposition about 100 dpa (displacement per atom) at and above room temperature [3], has been transformed into an amorphous phase under the 85 MeV iodine ion irradiation with a rate of an electronic deposition above 4-5 keV/nm and an accumulated dose above 1.5-2 GGy [4].

In the present study, we examined further radiation responses due to the high energy electronic excitations for oxide ceramics of MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and MgO through a cross-sectional transmission electron microscopy (XTEM), and compare the behaviors among oxide ceramics of aluminum and magnesium to obtain further information concerning effects of high density electronic excitations.

### 2. Experimental procedure

Polycrystalline sintered samples of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and MgO were used for this study. The samples in a dimension of 5x3x0.3mm<sup>3</sup> were polished to a mirror finish on one side and annealed at 1273 K for 1 h. The samples were irradiated with 85 MeV I<sup>7+</sup> iodine ions accelerated by Tandem Accelerator of JAERI to doses of 0.12-1.2x10<sup>19</sup>/m<sup>2</sup> at the ambient temperature with a particle flux of 1x10<sup>14</sup>/m<sup>2</sup> · s. Specimens for XTEM were cut perpendicular to the ion-incident surface and thinned to an electron transparency up to a depth around 10  $\mu$ m from the incident surface using a focused ion beam (FIB) thinning apparatus with Ga ions accelerated to 30 keV. XTEM observations were performed using a JEM 2000FX electron microscope operating at 200 kV.

Depth profiles of the energy deposition cross sections through electronic and nuclear processes for 85MeV I-ions incident on MgO along with stopped ion concentrations are shown in Fig. 1 from the calculation using the extended E-DEP-1 code [5]. The figure shows that the average projected range for the ions is 8.7  $\mu$ m and the stopped ion concentrations peak there to be about 130 atomic ppm, respectively, for the irradiation to

$1 \times 10^{19}/\text{m}^2$ . The dpa values in the sample peak to be 1 dpa around a depth of  $8.5 \mu\text{m}$ , from the calculation assuming displacement threshold energy to be 40 eV common to Mg, and O atoms. The profiles for  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  are similar to that for MgO.

### 3. Results and discussion

Damage structures produced by the irradiation to a dose of  $1.2 \times 10^{19}/\text{m}^2$  are compared in Fig. 2, for the three Al-Mg oxide samples of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  and MgO. The  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sample is observed to be amorphized up to depths around  $5\text{-}6 \mu\text{m}$  from the ion-incident surface for a dose of  $1.2 \times 10^{19}/\text{m}^2$  (Fig.2 (1)), through a XTEM, as has been already described in detail [4]. No defect clusters are observed around  $7\text{-}8 \mu\text{m}$ , where displacement damages due to the nuclear energy deposition are predicted to be peaked to be 1 dpa. The  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  is observed to be also amorphized up to depths around  $6 \mu\text{m}$  from the ion-incident surface for the same dose (Fig.2 (2)). Again, no defect clusters are observed around  $8\text{-}9 \mu\text{m}$ , where displacement damages due to the nuclear energy deposition also peak to be 1 dpa. Microstructural changes observed in the  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  sample will be described in detail elsewhere [6].

The thickness of amorphized layer of  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  is larger than that of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , although in the latter, grains about to be amorphized are observed to have moved forward into already-amorphized region (Fig.2 (1)), so a clear border line is hard to be specified. Taking an averaged depth for the end of amorphized region for  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , the electronic energy deposition rate around these depths are 5 and 4 keV/nm, for  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ , respectively. That is,  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  is more susceptible to amorphization under a dense electronic excitation. This difference may be related with the nature of chemical bonding; presumably a co-existence of both the covalent bonding nature in Al-O and the ionic one in Mg-O bonding in  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  lattice would enhance amorphization with the smaller electronic excitation density, as compared with  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Note that no amorphization is observed for the MgO sample irradiated with iodine ions to the same dose (Fig. 2(3)). The fact demonstrates that a higher ionicity of chemical bonding and its more isotropic nature, as compared with those of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ , instantly recover the lattice disorders produced by electronic energy depositions.

In summary, the intercomparison among the present results indicates that the fractionally covalent and anisotropic nature of chemical bonding for  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  makes the region of depths easily amorphous by the electronic energy deposition above 1.5 GGy with  $\sim 4$  keV/nm.

### References

- [1] W. Wesch, O. Herre, P. I. Gaiduk, E. Wendler, S. Klaumunzer, P. Meier, Nucl. Instr. and Meth. B 146 (1998) 341.
- [2] T. Wiss and H. Matzke, Radiation Measurements, 31 (1999) 507.
- [3] S. J. Zinkle and L. L. Snead, Nucl. Instr. And Meth., B 116 (1996) 92.
- [4] T. Aruga, Y. Katano, T. Ohmichi, S. Okayasu, Y. Kazumata, Nucl. Instr. And Meth., B 166-

167 (2000) 913.

[5] T.Aruga, K. Nakata and S. Takamura, Nucl. Instr. And Meth., B 33(1988) 748.

[6] T. Aruga, Y. Katano T. Ohmichi, S. Jitsukawa, Surface and Coatings Technology 158-159 (2002) 444.

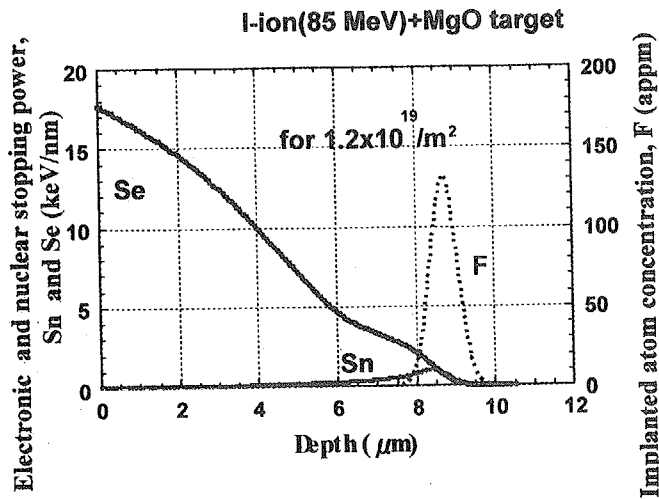


Fig.1. Electronic and nuclear stopping powers, Se, Sn for incident 85 MeV I<sup>7+</sup> ions, along with implanted ion concentrations for a dose of 1.2x10<sup>19</sup>/m<sup>2</sup>, as a function of depth, for MgO.

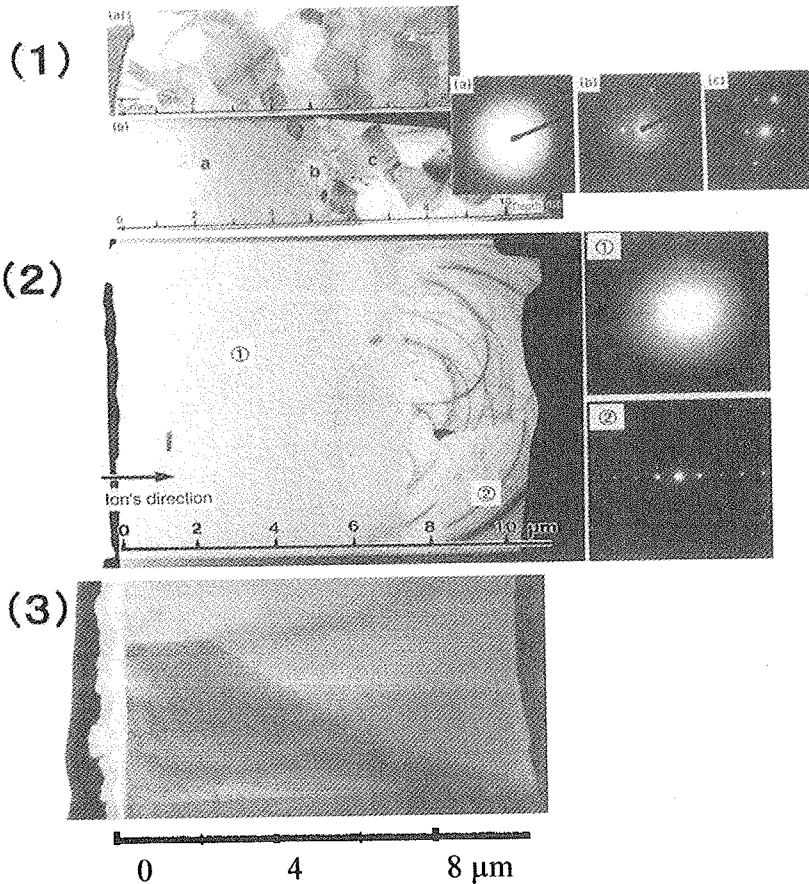


Fig.2. A comparison of damage structures for Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1), MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (2) and MgO (3), irradiated with 85MeV iodine ions to a dose of 1.2x10<sup>19</sup>/m<sup>2</sup>. For Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (top), microstructure before irradiation is also given for a comparison. Positions of selected area diffraction patterns shown are designated by respective marks.



3. ポスター発表  
 3.1 加速器関連  
 3.1.1 **FEBIAD** イオン源からの放出時間測定

長 明彦、松田 誠、市川 進一、片山 一郎<sup>a</sup>、鄭 淳讚<sup>a</sup>  
 原研、<sup>a</sup>KEK

MEASUREMENT OF RELEASE TIME FROM THE FEBIAD ION SOURCE

A. OSA, M. MATSUDA, S. ICHIKAWA, I. KATAYAMA, S. C. JEONG  
 JAERI, <sup>a</sup>KEK

【はじめに】

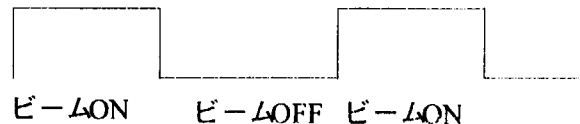
タンデム加速器に建設中の短寿命核加速施設では、ウランの陽子誘起核分裂反応や核子移行反応、重イオン核融合-蒸発反応などで短寿命核を合成し、オンライン同位体分離器(ISOL) イオン源でイオン化し、再加速する。この施設における加速可能な核種とその半減期は、ISOL イオン源の性能に大きく依存する。すなわち、ISOL イオン源により短寿命核をイオンする場合、イオン化効率は元素のイオン化ポテンシャルや蒸気圧などに依存すると共に、ターゲットからの拡散速度やイオン源内壁との脱着過程の速度などにも依存する。そこで、どの程度の半減期の短寿命核を再加速可能かを明らかにする目的で、重イオン注入法により ISOL 用イオン源からの元素の放出時間を調べた。

【放出時間測定】

ISOL イオン源における着目元素の放出時間の測定には、一般的に、核反応生成物をイオン化した後 ISOL で分離し、分離された核種の放射線強度の時間変化から求める方法が用いられている。しかし、この方法では目的元素で測定に適した半減期・収量の核種を選択しなければならない、放出時間に即した短い時間幅で十分な統計を得なければならない、核壊変の補正を行わなければならないなど、放出時間を精度よく決定することが困難であった。

一方、GSI の Kirchner が開発した安定同位体を用いた重イオン注入法は、核壊変などの補正を必要とせず、放出時間の精度良い測定を可能にした。方法の概要は図 1 に示す様に、加速器で目的元素を 1 次ビームとして加速、ISOL イオン源の捕獲箱中に注入し、1 次ビームの On/Off に伴う 2 次ビーム電流の時間変化を測定する。1 次ビームの On→Off による 2 次ビームの時間変化は、そのまま目的元素の放出時間を示す。また、2 次ビームと 1 次ビームの強度比から、イオン化全効率を得ることができる。

加速器からの安定核ビーム



ISOL で分離した 2 次ビームの電流



ターゲット/捕獲材での停滞による放出時間の遅れ

Fig. 1. 重イオン注入法による放出時間測定

## 【FEBIAD イオン源からの放出時間】

重イオン注入法により F, Kr, Xe の FEBIAD イオン源からの放出時間を測定した。ここで、F の同位体である  $^{18}\text{F}$  は短寿命核加速施設における拡散実験のプロープとしてイオン種開発が求められている。また、Kr, Xe は FEBIAD イオン源の動作状況を確認するイオン化効率校正物質として用いられ、通常は標準リークバルブによって一定量をイオン化室内にガス導入している。ここで、ガス導入によって決定したイオン化効率と重イオン注入法による効率とを比較することで、捕獲材周辺からイオン化室での目的元素の損失の有無を確認することができる。実験は、タンデム加速器で加速した F, Kr, Xe ビームを、イオン源内に設置した Graphite, Ta 箔などの捕獲材にイオン注入し行った。このとき、注入元素の飛程が捕獲材の厚さ方向の中央になるように、加速エネルギーを調整した。

Fig.2 に F の Ta 箔捕獲材からの放出時間曲線を示す。F の 2 次ビーム取り出しの方法としては、収量を上げるために単体のほかにイオン源内に Al 化合物を設置し  $\text{AlF}^+$  として取り出す方法が開発されているが、イオン源内で Al 濃度を安定に制御することが困難であった。我々は、イオン源内に残留している水素と反応し  $\text{HF}^+$  としてイオン化されていることに着目した。今回の運転条件では  $\text{HF}^+$  が  $\text{F}^+$  に比べて 7 倍の強度で得られた。また、核子移行反応による  $^{18}\text{F}$ 、 $^{20}\text{F}$  の生成を確認し、 $\text{H}^{18}\text{F}^+$ 、 $\text{H}^{20}\text{F}^+$  イオンとして効率よくイオン化できることを確認した。今後、 $\text{H}_2$  ガスもしくは水素を含む化合物ガスをイオン源内に導入することで、水素濃度によるイオン強度の制御方法について検討を進める。

Fig.3 に Kr, Xe の Graphite 捕獲材からの放出時間曲線を示す。陽子誘起ウラン核分裂反応でターゲットの母材となる Graphite からの放出時間は、概ね Ta 箔捕獲材からのものより速い。一方、イオン源構造材、捕獲材などへのイオン化されなかった注入元素の蓄積・再放出が認められた。また、標準ガスとして入れている Kr, Xe 及び 2 次ビーム電流の観測から、1 次ビームのイオン源への入射がイオン化効率に影響するため、Kr, Xe に関してガス導入によるイオン化効率と重イオン注入法による効率の比較は行えなかった。

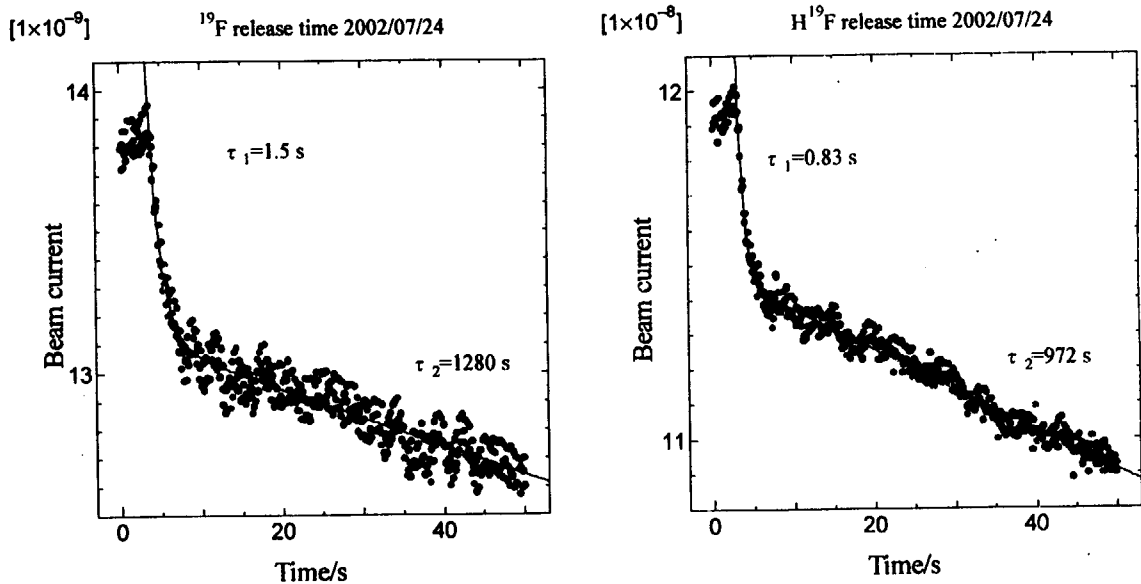


Fig.2.  $^{19}\text{F}$ ,  $\text{H}^{19}\text{F}$  イオンビームの Ta 箔捕獲材からの放出時間曲線。

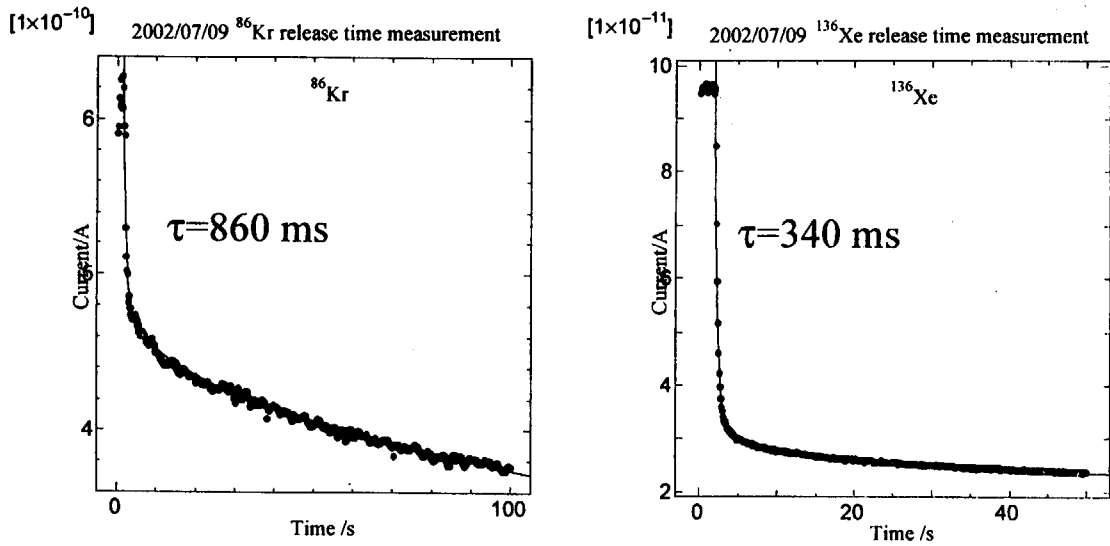


Fig.3 <sup>86</sup>Kr, <sup>136</sup>Xe イオンビームの Graphite 捕獲材からの放出時間曲線。

【まとめ】

F, Kr, Xe についてイオン源からの放出時間を Graphite, Ta 箔などを捕獲材に使用し測定した。実験した 3 種類の元素について、Graphite 捕獲材から、1 秒程度の速い放出時間を確認した。このことから、FEBIAD イオン源は半減期数秒程度までの短寿命核種のイオン化・引き出しが可能であることが明らかとなった。今後、短寿命核加速器施設における実験で供与が予定される他の元素に関しても、表面電離型イオン源も含めて測定を行う予定である。

実験を通して、イオン源のコンディショニング、イオン源構造の問題点がいくつか明らかになってきた。問題点を解決しつつ短寿命核加速器施設の大きな特徴である陽子誘起ウラン核分裂で生成する短寿命核のイオン化に向けて、イオン源の開発を進めていく。





### 3.1.2 RNB 計画用安定核イオンビームの開発

日本原子力研究所（東海） 加速器管理室  
松田誠、仲野谷孝充

原研タンデム加速器では KEK と合同で短寿命核加速施設（RNB 加速施設）の建設を進めている。タンデムからの一次ビームをイオン源付き同位体分離器（ISOL）に入射し生成された短寿命核ビームを SCRFQ 線形加速器および IH-1 線形加速器を用いて最大約 1MeV/amu のエネルギーまで加速し、各種の実験が行なわれる予定である。計画の第 2 段階では IH-1 線形加速器の後段に pre-booster を設置し 2MeV/u のエネルギーまで加速し、既存の超電導ブースターに入射することでビームの最終エネルギーは 5~9MeV/amu に達する予定である。この施設では短寿命核ビームだけでなく、安定核ビームの加速も容易に行なえるように安定核ビーム専用イオン源（SNB イオン源）が設置される。

短寿命核ビームのビーム強度は多いもので  $10^9$  個/秒であり、核種によっては  $10^3$  個/秒以下ということもありえる。非常に微量のビームであるので、加速器及びビーム輸送系の調整を短寿命核ビームで行なうことは困難である。よって安定核ビームをパイロットビームとして RNB 加速器に入射し、加速器およびビーム輸送系の調整を行なった後に短寿命核ビームの加速を行なう方法がとられる。このため SNB イオン源からは各種短寿命核ビームの  $m/q$  と同じあるいはそれに近いイオンビームの生成が求められる。SNB イオン源は正多荷イオン源であるので、タンデム加速器では加速困難であったアルカリ金属、アルカリ土類金属イオン等の生成が容易になる。線形加速器で加速を行なうのでビーム強度もタンデム加速器に比べ 1~2 桁増強することが可能である。

SNB イオン源には 10GHz、RF~200W の永久磁石型 ECR イオン源（NANOGAN）を使用する。現在、このイオン源はタンデム加速器の高電圧端子に設置され主に希ガス多荷イオンの生成に用いられているが本計画にあわせ多様なイオン種生成を行なう。

金属イオンの生成法には主に以下の 4 つの方法がある。

- オープン法

原理 イオン源内に小型のオープンを導入し内部で試料を加熱しプラズマ中に蒸気を導入しイオン化する方法である。

長所 操作法が容易で非常に安定。イオン化できるイオン種が比較的豊富である。低融点（ $<1000^{\circ}\text{C}$ ）金属が可能

短所 坩堝により温度の上限が決まるため高融点金属には不向き。坩堝の容量が制限され試料の消費も比較的早く長時間（数日）の運転が難しい。

- MIVOC 法

原理 室温で蒸気圧の高い有機金属化合物の蒸気をプラズマ中に導入する。

長所 構造が簡単で操作が気体を扱うのとほぼ変わらない。非常に安定で制御が簡単。

短所 有機金属として安定に存在する化合物の種類に限られる。化合物によっては毒性を持つ。チャンバー内が炭素などにより汚染される。

- ロッド挿入法

原理 棒状の試料をイオン源内に挿入しプラズマに接触させプラズマ加熱で試料を蒸発させる。

長所 高融点の金属をイオン化できる。装置の構造が単純。

短所 プラズマが安定せず制御が難しい。多荷イオンが生成されにくい。低融点金属には不向き。試料の消費が激しい。

- スパッタ法

原理 イオン源後方部に挿入した試料に数 kV のバイアス電位をかけてプラズマでス

パッタさせる。基本構造はロッド法とほとんど同じ。

**長所** 高融点金属をイオン化できる。ビームが比較的安定。

**短所** ビーム強度が弱い。試料に電気伝導性が必要。試料の消費が激しい。

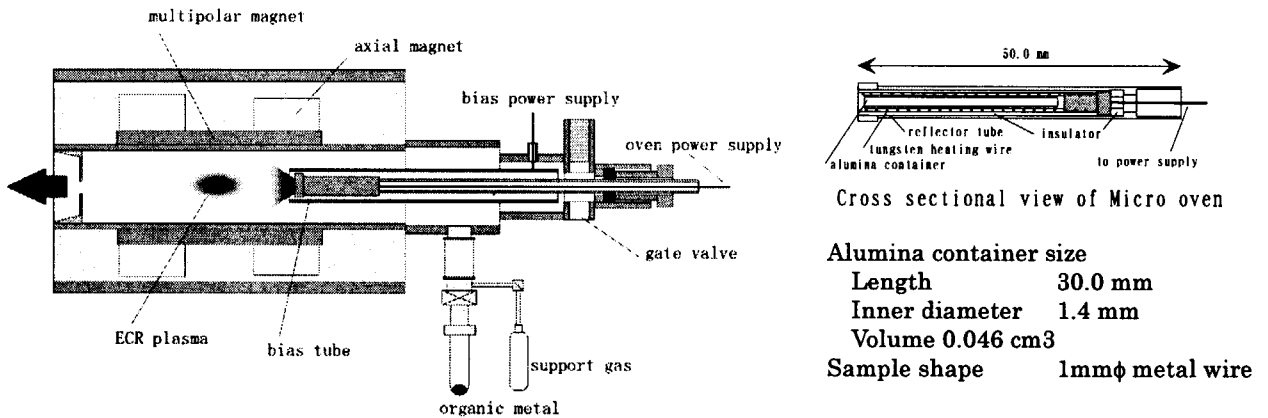
生成試験を始めたばかりであるが、オープン法とMIVOC法について生成試験を行なった。実験の概要を図1に示し、生成試験の結果を表1に示す。

• オープン法

オープン法は NANOGAN 用に売られている製品を使用し、14W で約 1000℃まで加熱できることを確認している。試料消費は早く約 10 時間でなくなった。イオン源の運転は安定して行なうことができた。

• MIVOC 法

イオン源のガス導入口にコンダクタンスの大きなバルブを挟んでMIVOC試料を入れたチャンバーを取り付けた。イオン源は2、3日の連続運転中も安定に動作しガス法とほぼ同じ感覚で運転できた。試料取り付け直後は試料中に含まれる水によりイオン収量が少ないが時間とともに収量は増加していった。現在は試料蒸気をイオン源中に導く前に高真空中に置き水の除去を行ない、余計な汚染を防止するようにしている。しかしながら試験後はチャンパー内が汚染され炭素イオンがバックグラウンドとして残ってしまう。またチャンパー内も分解生成物で汚染されてしまう。

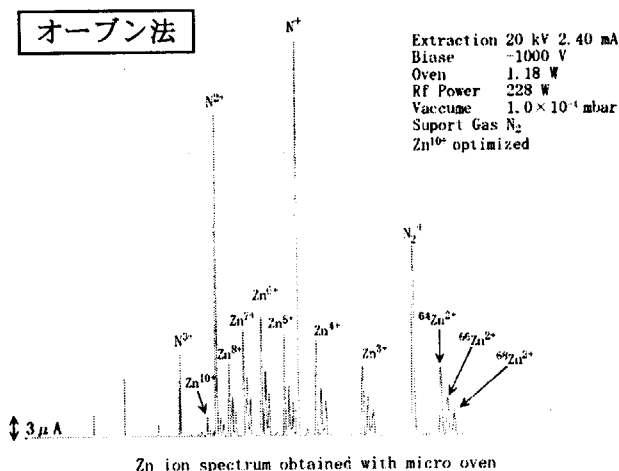


The cross sectional view of ECR ion source

図1 実験装置概要

表1 金属イオン生成試験結果

イオン種	生成法	試料 +サポ-トガス	電流 $\Sigma q^+$ [ $\mu\text{Ae}$ ]													
			7+	8+	9+	10+	11+	12+	13+	16+	17+	18+	20+			
Ar	gas	Ar+O <sub>2</sub>	9.9	12	4.0											
Fe	MIVOC	Fe(C <sub>5</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	26	14	5.2	2.0										
Os	MIVOC	Os(C <sub>5</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub> +N <sub>2</sub>		0.93	1.1	1.3	0.68		0.85			0.05	0.02			
Ni	MIVOC	Ni(C <sub>5</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	6.2	4.9	2.8	1.2										
Zn	oven	Zn+N <sub>2</sub>	28	19	9.2	4.9										
Pb	oven	Pb+N <sub>2</sub>	5.6	8.7	11	13	14	15				6.9	3.7	1.9	0.38	



Zn ion spectrum obtained with micro oven

図2 Znイオン生成試験

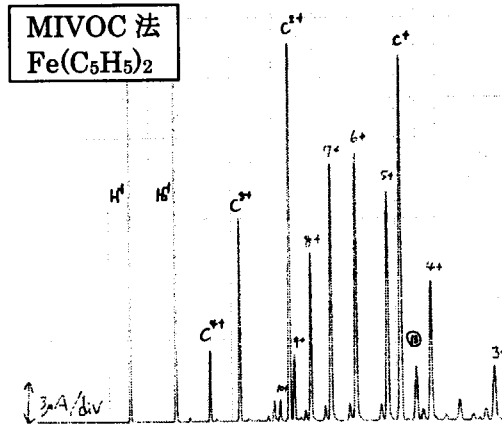


図3 Feイオン生成試験

今後金属イオン生成試験を行なうにあたり、プラズマチャンバーのクリーニングを頻繁に行なうことが予想される。以前チャンバーの交換時に多極磁場構成用の磁石が脱落する事故が発生したのでそれを予防するためにチャンバーの内径を1mm小さくしφ25mmし、脱落防止用のライナーを取り付けることにした。口径を小さくしたことによるイオン収量の変化を図4に示す。高多荷イオンにおいてビーム量の減少が見られ、約1~2割減となることが分かる。

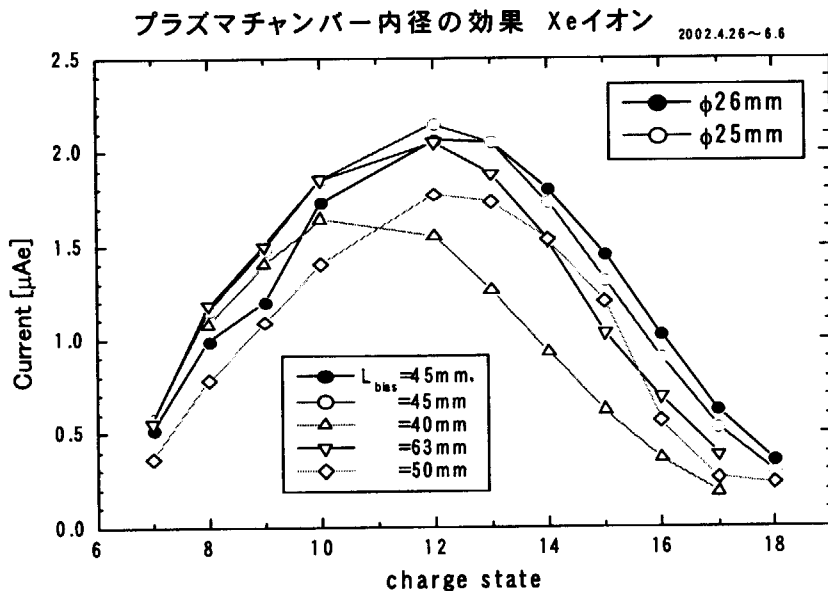


図4 プラズマチャンバー内径とイオン収量の比較

MIVOC法は有用なイオン生成法であるがイオン種に限られるため、オープン法を主体としてイオン生成を行なう予定である。オープンの容量を大きくし長時間の運転を可能にするべく容量の大きな物を製作し試験する。また最高温度を上げ生成イオン種を増やす予定である。他の金属イオンの生成試験も試み、イオン種毎に最適な生成法を確立したい。



### 3.2 核物理関連

#### 3.2.1 <sup>169</sup>Re の回転バンド

#### ROTATIONAL BANDS OF <sup>169</sup>Re

周小紅, 張玉虎, 鄭勇

X. H. Zhou, Y. H. Zhang, Y. Zheng

近代物理学研究所 中国科学院

Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences

菅原昌彦 M. SUGAWARA

千葉工業大学 教育センター

Center of Education, Chiba Institute of Technology

大島真澄, 藤暢輔, 小泉光生, 長明彦, 早川岳人, 初川雄一, 静間俊行

M. OSHIMA, Y. TOH, M. KOIZUMI, A. OSA, T. HAYAKAWA, Y. HATSUKAWA, T. SHIZUMA

日本原子力研究所 Japan Atomic Energy Research Institute

#### 1. はじめに

極端に中性子の不足した Re アイソトープは  $\beta$  変形や  $\gamma$  変形に対してソフトになることが予想され, 奇核では原子核全体の形状が奇陽子の占める配位に依存して大きく変わることが期待される。例えば奇陽子が, プロレート変形におけるニルソンドиаグラムで右肩上がりの  $9/2^- [514]$  軌道や  $5/2^+ [402]$  軌道を占める場合は変形度の小さい状態が期待されるのに対して, 右肩下がりの  $1/2^- [541]$  軌道や  $1/2^+ [660]$  軌道を占める場合にはその偏極効果によって大きな変形が引き起こされると考えられる<sup>1-3)</sup>。このような奇陽子配位による変形度の違いは, 回転バンド構造に現れる, 準位エネルギーや遷移強度の指標依存性, バンド交差現象, 角運動量の回転整列などの現象を通じて実験的に調べることができる。

#### 2. 実験と解析

<sup>169</sup>Re の励起状態は, タンデム加速器から供給される <sup>28</sup>Si ビームを厚さ  $1.3 \text{ mg/cm}^2$  の <sup>144</sup>Sm 金属フォイル (厚さ  $7.0 \text{ mg/cm}^2$  の鉛バックキグ付き) に照射することにより, <sup>144</sup>Sm(<sup>28</sup>Si, 1p2n) 反応を用いて生成された。  $\gamma$  線の測定には 12 台のコンプトン抑止型 HPGe 検出器からなる GEMINI アレイを用いている<sup>4)</sup>。まず, <sup>169</sup>Re に属する  $\gamma$  線を同定し,  $\gamma\gamma$  同時計数実験のための最適ビームエネルギーを見いだすために, 140, 145, 150 MeV の 3 点で励起関数の測定を行った。その後最適ビームエネルギー 145 MeV で  $\gamma\gamma$  及び X- $\gamma$

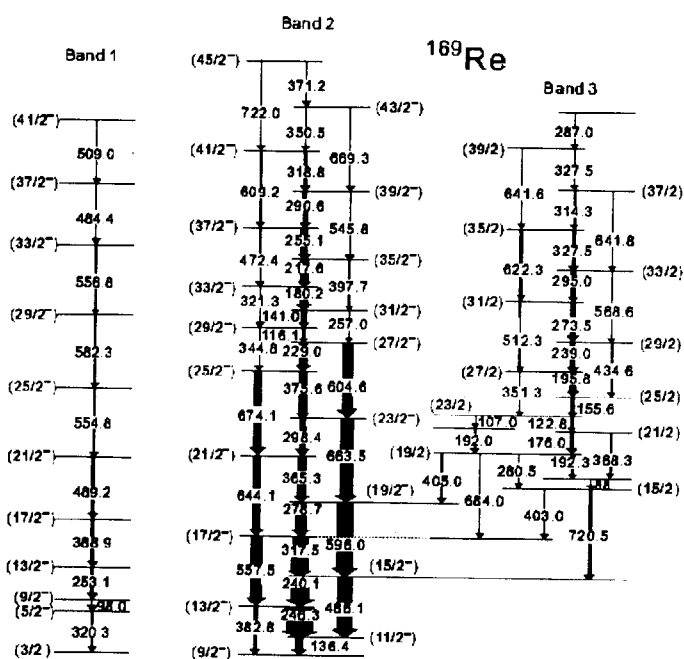


図 1 <sup>169</sup>Re の準位図

同時計数実験を行い、総数  $2.5 \times 10^8$  個のイベントデータを DDS テープ上に収集した。テープ上のイベントデータからレベルスキームを構築するための対称な  $\gamma\gamma$  マトリックスとスピンを同定するための DCO マトリックスを生成した。

### 3. 結果と考察

図1に今回構築された準位図を示す。Band1は  $\Delta I=2$  のカスケードからなる decouple band の特徴を示しており、近隣の原子核で見られる同様のバンド構造を参考にすると、陽子  $1/2^- [541]$  配位を持つと考えられる。陽子  $1/2^- [541]$  配位はプロレート変形におけるニルソンダイアグラムで右肩下がりの軌道であり、Band1の変形度はBand2よりも大きくなることが予想される。この予想は、Band1の回転整列周波数が  $\hbar\omega=0.27\text{MeV}$  とBand2の場合よりも大きくなっている事実とも合致する。

Band2は最も強く励起され(45/2-)準位まで拡張された。このbandは  $9/2^- [514]$  配位に基づく基底状態回転バンドと推定され、回転周波数  $\hbar\omega=0.23\text{MeV}$  のところで、中性子 AB crossing によると思われるバックベンディング現象を示している。

Band3はその励起エネルギーとband head領域ですでにかなり大きな回転整列角運動量を保持していることなどから3準粒子配位を持つであろうと推測される。準位エネルギーがほとんど指標依存性を持たないことから、Band3は比較的K量子数の大きな陽子配位を含むことが必要で、それに対応するフェルミ準位近傍の陽子配位としては  $9/2^- [514]$  が考えられる。そこで、Band3の配位は  $\pi [9/2^- [514]] \otimes \nu [AE]$  である可能性が大きい。この予想はBand3が  $\pi [9/2^- [514]]$  配位をもつBand2へと優先的に崩壊する事実とも合致する。従って、Band3で見られる  $\hbar\omega=0.31\text{MeV}$  でのアップベンディング現象は、中性子 BC crossing によると思われる。

図2にBand2内での  $B(M1)/B(E2)$  比のスピンの依存性を示す。 $B(M1)/B(E2)$  の値は  $\gamma$  線の分岐比より以下の関係式を用いて求められる<sup>5)</sup>。

$$\frac{B(M1; I \rightarrow I-1)}{B(E2; I \rightarrow I-2)} = 0.0697 \frac{[E_\gamma(I \rightarrow I-2)]^5}{[E_\gamma(I \rightarrow I-1)]^3} \frac{1}{\lambda} \frac{1}{1+\delta^2} \left(\frac{\mu_N^2}{e^2 b^2}\right)$$

また、図2中の実線は回転模型( $B(E2)$ )と半古典的な角運動量結合模型( $B(M1)$ )に基づく次のような表式( $\gamma=0$ を仮定)に従って計算された値である<sup>6,7)</sup>。

$$\frac{B(M1; I \rightarrow I-1)}{B(E2; I \rightarrow I-2)} = \frac{12}{5Q_0^2 \cos^2(\gamma+30^\circ)} \left\{ 1 - \frac{K^2}{(I-1/2)^2} \right\}^{-2} \frac{K^2}{I^2} \times \left[ (g_1 - g_R) \left\{ (I^2 - K^2)^{1/2} - i_1 \right\} - (g_2 - g_R) i_2 \right]^2 \left(\frac{\mu_N^2}{e^2 b^2}\right)$$

$\gamma=0$ を仮定して計算した値がバンド交差以下のスピンの対して実験値よりも大きくなっていることから、Band2ではバンド交差以前で負の $\gamma$ 変形を持っていることが示唆される。また、バンド交差以後に  $B(M1)/B(E2)$  比が不連続的に増加する現象は、回転整列した中性

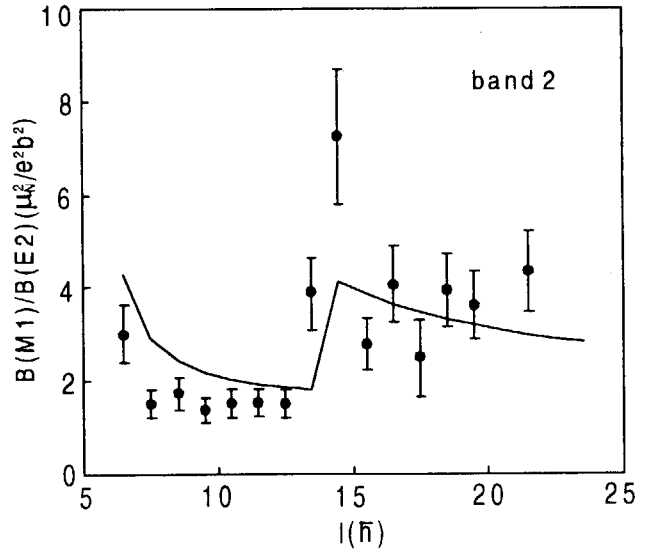


図2 Band2における  $B(M1)/B(E2)$  比のスピンの依存性

子対の磁気双極子モーメントと変形の軸に整列している陽子の磁気双極子モーメントが加算されるためと解釈することができる。

#### 4. まとめ

以上まとめると、今回の研究では、 $^{169}\text{Re}$ 核において3つの回転バンドを同定することに成功し、それぞれのバンドにおける回転整列周波数の違いは奇陽子配位の持つ変形駆動効果によるものであることを明らかにした。また、 $B(M1)/B(E2)$ 比の分析から、基底状態回転バンドが回転整列をする前の低スピン領域では負の $\gamma$ 変形を持っていることが示唆された。

#### References

- 1) R. A. Bark et al.; Nucl. Phys. A501, 157(1989)
- 2) H. Carlsson et al.; Nucl. Phys. A551, 295(1993)
- 3) L. Hildingsson et al.; Nucl. Phys. A513, 394(1990)
- 4) K. Furuno et al.; Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A421, 211(1999)
- 5) S. Juutinen et al.; Nucl. Phys. A526, 346(1991)
- 6) F. D. Auer and S. Frauendorf; Proc. Conf. on High angular momentum properties of nuclei, Oak Ridge, 1982, ed. N. R. Johnson (Harwood Academic, New York, 1983) p. 143
- 7) A. J. Larabee et al.; Phys. Rev. C29, 1934(1984)



### 3. 2. 2 Fragment Mass Distribution of the $^{239}\text{Pu}(\text{d}, \text{pf})$ Reaction via the Super-deformed $\beta$ -vibrational Resonance

超変形  $\beta$  振動状態を経由する  $^{239}\text{Pu}(\text{d}, \text{pf})$  反応の核分裂片質量数分布

K. Nishio<sup>1</sup>, H. Ikezoe<sup>1</sup>, Y. Nagame<sup>1</sup>, S. Mitsuoka<sup>1</sup>, I. Nishinaka<sup>1</sup>, L. Duan<sup>2</sup>, K. Satou<sup>1</sup>, M. Asai<sup>1</sup>, H. Haba<sup>1</sup>, K. Tsukada<sup>1</sup>, N. Shinohara<sup>1</sup>, S. Ichikawa<sup>1</sup>, T. Ohsawa<sup>3</sup>  
西尾勝久<sup>1</sup>, 池添博<sup>1</sup>, 永目諭一郎<sup>1</sup>, 光岡真一<sup>1</sup>, 西中一朗<sup>1</sup>, L. Duan<sup>2</sup>, 佐藤健一郎<sup>1</sup>,  
浅井雅人<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>1</sup>, 塚田和明<sup>1</sup>, 篠原伸夫<sup>1</sup>, 市川進一<sup>1</sup>, 大澤孝明<sup>3</sup>

1. Advanced Science Research Center, JAERI, Ibaraki 319-1195, Japan

2. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, 730000 Lanzhou, China

3. Department of Electrical & Electronic Engineering, School of Science & Engineering,  
Kinki University, Osaka 577-8502, Japan

1. 日本原子力研究所先端基礎研究センター

2. 中国現代物理研究所

3. 近畿大学理工学部電気電子工学科

#### 1. Introduction

For neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$ , there is an old investigation on the mass division following the neutron capture resonance [1,2] that fission through the  $J^\pi = 1^+$  state enhances the relative abundance of mass-asymmetric fission products, in the abundance of  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{115}\text{Cd}$ , compared to fission through the  $J^\pi = 0^+$  state. This was interpreted in [3] as an effect of the collective motion at the saddle point that the octupole vibration of  $K^\pi = 1^+$  with mirror asymmetry results in the enhanced mass asymmetry compared to the ground state of  $K^\pi = 0^+$ , namely the vibrational motion at the saddle point drives the system to the asymmetric fission mode (path). Supporting this interpretation, it would be natural to presume that when the  $\beta$ -vibration with  $K^\pi = 0^+$  is populated at the middle stage of the fission process the resulting fission may have a symmetric fission component larger than the thermal neutron-induced fission due to vibrational motion with mirror symmetry. We can find the  $\beta$ -vibrational state on the second minimum of the double-humped fission barrier (super-deformed minimum : SD). This state is observed below the threshold energy in the form of an enhanced fission cross section due to resonance tunneling induced when the excitation energy ( $E_{\text{ex}}$ ) of the compound nucleus matches the level [4-7].

We measured, for the first time, the mass distribution of fission fragments by gating on the  $\beta$ -vibrational resonance. We studied the fission of  $^{240}\text{Pu}$  populated by  $^{239}\text{Pu}(\text{d}, \text{p})$  reaction.

#### 2. Experimental Methods and Data Analysis

The reaction  $^{239}\text{Pu}(\text{d}, \text{pf})$  was used to study resonance fission of  $^{240}\text{Pu}$ . The 13.5 MeV deuteron beam was supplied by the JAERI-tandem accelerator, and the typical beam current was 5 nA.

The  $^{239}\text{Pu}$  target was made by electrodeposition of  $^{239}\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$  on a  $90 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  thick nickel foil, and the target thickness was  $35 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ .

We have determined the excitation energy of  $^{240}\text{Pu}$  by measuring protons using silicon detectors as in [4]. The outgoing protons resulting from the (d,p) reaction were detected by a  $\Delta E$ -E telescope which consisted of  $300 \mu\text{m}$  ( $\Delta E$ ) and  $1500 \mu\text{m}$  (E) thick silicon detectors. The telescope was set at  $135^\circ$  relative to the beam direction with a solid angle of  $45 \text{ msr}$ . The protons were easily distinguished from deuterons and tritons on the  $\Delta E$ -E map, allowing the selection of neutron transfer events. The energy resolution of  $\Delta E$ -E telescope, namely the energy resolution for protons, was  $55 \text{ keV}$  (FWHM), which was determined by the elastic peak of the deuteron. The resolution includes the energy spread of about  $30 \text{ keV}$  arising from the kinetic effect. The proton energy was transformed to the excitation energy of  $^{240}\text{Pu}$  using the mass table of Ref. [8] (The  $Q$ -value for the ground state nuclear transfer in  $^{239}\text{Pu}(\text{d,p})^{240}\text{Pu}$  is  $4.31 \text{ MeV}$ ).

Two fission fragments were coincidentally detected by two silicon PIN diodes, which were equipped on both sides of the target with a similar aperture. The center of the PIN diodes were set at  $90^\circ$  to the beam direction. The diodes which have an active area of  $1000 \text{ mm}^2$ , each, were masked by plates having a circular hole of  $31.9 \text{ mm}$  diameter, and each diode was viewed by the target at a solid angle of  $1.25 \text{ sr}$ . The calibration of the fission detectors is made by using the Schmidt formula [9]. Details of the calibration method is seen in [10].

### 3. Experimental Results and Discussions

Figure 1 shows the proton-fission coincidence events plotted as a function of excitation energy of  $^{240}\text{Pu}$ . The resonance peak is observed at  $5.05 \text{ MeV}$ . This energy is close to that measured by Glassel *et al.* [6] and Hunyadi *et al* [7].

By measuring the  $^{239}\text{Pu}(\text{d,pf})$  reaction, fission events resulting from excitation energies near the first fission barrier height ( $E_A = 5.80 \text{ MeV}$  [4]) could be obtained. We show firstly in Fig. 2(A) the mass yield curve following the excited compound nucleus of  $6.0 > E_{\text{ex}} > 5.3 \text{ MeV}$ . The yield is normalized such that the sum of the yields becomes  $200 \%$ . This spectrum agrees with that for thermal neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$  by Wagemans *et al.* ( $E_{\text{ex}} = 6.53 \text{ MeV}$ ) [11] shown by the solid curve. The data of [11] were obtained by measuring the kinetic energies of both fragments (2E method) by using silicon detectors similar to our experimental method.

Fission events through the vibrational resonance being characterized by their excitation energy between  $4.78 < E_{\text{ex}} < 5.30 \text{ MeV}$  (see Fig.1) result in the mass yield in Fig.2 (B). Although the mass yield curve constructed by using only about 80 events has a large uncertainty, the asymmetric fission character is evident, and the yield agrees with that for  $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$  as well as the gross trend that the sharp rise in the near symmetric region when going from the heavy fragment mass  $m_{\text{H}} = 125 \text{ amu}$  to  $135 \text{ amu}$  and the gradual decrease in the far asymmetric region from  $m_{\text{H}} = 140 \text{ amu}$  to  $160 \text{ amu}$ . The yield reaches the maximum at around  $m_{\text{H}} = 135 \text{ amu}$  for all spectra shown in Fig.2. We have determined the average value of the heavy fragment mass as  $\langle m_{\text{H}} \rangle = 140.2 \pm 2.8 \text{ amu}$ , where the error comes from the binning and the uncertainty arising from the energy calibration process. This agrees



with the value  $139.8 \pm 1.1$  amu obtained from the spectra in Fig.4(A) within the error and with the value 139.7 amu for  $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}}, f)$  [11]. The present data then lead to the conclusion that fission through the  $\beta$ -vibrational resonance does not show any significant enhancement in the symmetric mass division within the error.

We want to show in Fig. 2(C) the mass yield for the fission of shape isomer in  $^{240}\text{Pu}$  [12] (half-life is 3.8 ns [13]). This is localized in the SD of the double-humped fission barrier (2.25 MeV above the ground state) [7], and has the  $(J^\pi, K)$  value of  $(0^+, 0)$ . Isomeric fission forms a good reference in the sense that the nuclear shape is the same as that experienced by the  $\beta$ -vibrational fission. Isomeric fission forms a mass distribution similar to that for  $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}}, f)$  and hence to the  $\beta$ -vibrational fission in Fig. 2(B).

## 5. Conclusions

Motivated by the speculation that the  $\beta$ -vibration on the SD of the double-humped fission barrier would result in an enhancement of the symmetric mass components, the mass distribution of  $^{240}\text{Pu}$  following the resonance tunneling originating from this level was measured for the first time. The obtained distribution shows an asymmetric mass division similar to the one for the thermal neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$  and the isomeric fission of  $^{240}\text{Pu}$ . This indicates that the system through  $\beta$ -vibrational resonance comes out in the asymmetric fission valley that the  $^{240}\text{Pu}$ -isomer and  $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}}, f)$  descend.

## References

- [1] R.B. Regier, W.H. Burgus, R.L. Tromp, and B.H. Sorensen, Phys. Rev. **119** (1960) 2017.
- [2] G.A. Cowan *et al.*, Phys. Rev. **144**, 979 (1966).
- [3] A. Michaudon, *Advances in Nuclear Physics*, Presum Press (1973), Vol.6, p.1.
- [4] B.B. Back *et al.*, IAEA Symposium in Physics and Chemistry of Fission, Vienna, IAEA, p.351 (1969).  
B.B. Back, J. Bondorf, G. Otroschenko, J. Pederson and B. Rasmussen, Nucl. Phys. **A165**, 449 (1971).  
B.B. Back, O. Hansen, H.C. Britt, J.D. Garrett, Phys. Rev. C **9**, 1924 (1974).
- [5] H.J. Specht *et al.*, J.S. Fraser, J.C.D. Milton, W.G. Davies, in Proceedings of the IAEA Symposium in Physics and Chemistry of Fission, Vienna, IAEA, p.363 (1969)
- [6] P. Glassel, H. Rosler and H.J. Specht, Nucl. Phys. **A256**, 220 (1976).
- [7] M. Hunyadi *et al.*, Phys. Lett. B **505**, 27 (2001).
- [8] G. Audi, and A.H. Wapstra, Nucl. Phys. **A595**, 409 (1995).
- [9] H.W. Schmitt *et al.*, Symposium on Physics and Chemistry of Fission, Vol.1, IAEA (1965) p.531.
- [10] K. Nishio *et al.*, Phys. Rev. C, in press.
- [11] C. Wagemans *et al.*, Phys. Rev. C **30**, 218 (1984).
- [12] J. Weber, H.J. Specht, E. Konecny, and D. Heunemann, Nucl. Phys. **A221**, 414 (1974).
- [13] H.C. Britt, B.H. Erkkila and B.B. Back, Phys. Rev. C **6**, 1090 (1972).

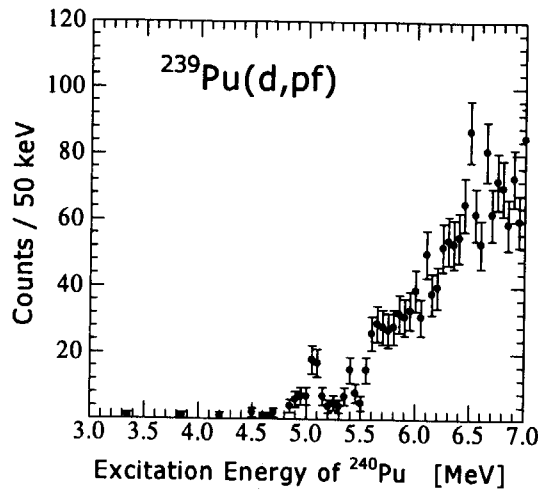


Fig.1 Number of coincidence events between fission fragments and proton plotted as a function of excitation energy of  $^{240}\text{Pu}$ .

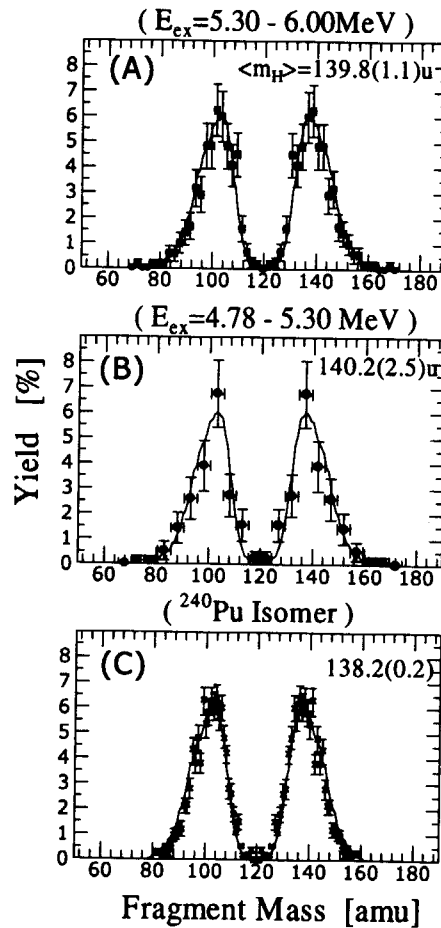


Fig.2 Mass yield curves obtained for the  $^{239}\text{Pu}(d, pf)$  reaction ( (A) and (B) ). These spectra are made by setting the excitation energy range as (A)  $6.0 > E_{ex} > 5.3$  MeV and (B)  $5.30 > E_{ex} > 4.78$  MeV. The average value for the heavy fragment mass  $\langle m_H \rangle$  is shown in each section of the figure. The error shown in (A) and (B) comes from the binning and the uncertainty arising from the energy calibration process. Mass yield curve for the isomer fission [12] is shown in (C). Solid curve appearing in the every section is the data for  $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$  [11].



### 3.2.3 K核異性体の崩壊メカニズム DECAY MECHANISM OF K ISOMERS

静間 俊行、早川 岳人

日本原子力研究所 関西研究所 光量子科学研究センター

森川恒安、御手洗志郎、清水良文

九州大学理学部

Toshiyuki SHIZUMA and Takehito HAYAKAWA

Advanced Photon Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

Tsuneyasu MORIKAWA, Shiro MITARAI and Yoshifumi R. SHIMIZU

Faculty of Science, Kyushu University

#### 1. はじめに

核の励起状態で比較的長い(1ナノ秒以上)寿命を有するものは、核異性体(nuclear isomer)と呼ばれている。核異性体は、その起因により[1]、スピギャップアイソマー、核分裂アイソマー、K核異性体の3つに分類される。K核異性体は、四重極変形をもつ原子核における対称性に起因する。このような原子核では、全角運動量の対称軸射影成分(K)が良い量子数となる。したがって、ガンマ遷移において、全角運動量の選択則に加えて、K量子数に関する選択則が適用される。K量子数の大きな変化を伴う遷移は抑制され、始状態は核異性体となりやすい。K核異性体は、質量数180領域において多数現れることが知られている。

ここでは、K核異性体に関して、崩壊のメカニズムや中性子過剰核における長寿命核異性体の存在の可能性について議論する。

#### 2. K核異性体の崩壊メカニズム

質量数180領域原子核の中で、 $^{178}\text{Hf}$ 核異性体( $K^\pi=16^+$ 、半減期31年)や、 $^{180}\text{Ta}$ 核異性体( $K^\pi=9^-$ 、半減期  $1.2 \times 10^{15}$ 年以上)は、特に有名である。これらの核異性体は、非常に大きなK量子数の変化( $\Delta K=8$ )を伴って崩壊するため、このように長い寿命を持つと考えられている。異なるK量子数をもつ状態間の遷移では、通常のスピンとパリティに関する選択則に加えて、K量子数に関する選択則( $v = |K_i - K_f| - \lambda < 0$ )が適用される。ここで、 $\lambda$ は遷移の多重極度、 $v$ はK禁止の度合を表わし、 $v > 0$ となるような遷移は禁止される。K選択則では、異なるK量子数をもつ状態間の遷移は、K量子数の差を最小にするよう起きる。また、上述の例のように、大きな量子数の差を伴う遷移は強く抑制される。

異なる $v$ 値もつ遷移の抑制の度合を比較するために、 $f_v = F^{1/v} = (T_\gamma/T_w)^{1/v}$ で定義される hindrance ファクター  $F$ 、および reduced hindrance ファクター  $f_v$  という量を用いる。ここで、 $T_\gamma$ はガンマ線遷移の半減期、 $T_w$ は単一粒子遷移による半減期の Weisskopf 値である。経験値として、M1およびE2遷移に対して  $f_v = 10 \sim 100$ が得られている[2]。

しかしながら、上述の経験値と大きくずれるガンマ遷移が発見されてきた[3]。測定された遷移確率は、経験値に対して、 $10^3 \sim 10^{15}$ 倍程度大きく、非常に強い  $K$  混合が起きていると思われる。われわれは、このような遷移に対して、ガンマ変形自由度を取り入れた量子トンネル効果(ガンマトンネリング模型)による遷移確率の考察を行ってきた。その結果、 $\Delta K$  が10以上の遷移に対して、実験値と計算値の良い一致を得ることができ[4,5,6]、非軸対称変形に対する動的な影響が重要であると結論した。

上記では、始状態、終状態ともに軸対称変形を仮定して議論を進めた。一方、軸対称性が破れた状態については、たとえば、 $^{184}\text{Os}$  原子核において、その存在の可能性が示されている[7]。この場合、3 軸非対称状態は静的(static)な状態で、ガンマトンネリング模型での動的(dynamical)なガンマ変形不安定状態とは区別される。静的な3 軸非対称変形状態が、 $K$  混合や、 $K$  核異性体の崩壊に対して、どのように寄与するかは非常に興味深い問題である。また、通常回転軸に対して傾いた軸の周りの回転も定常状態(斜軸回転)として現れることが知られており、実験的には、 $^{182}\text{W}$ [8]や、 $^{184}\text{Os}$ [9]原子核で確認されている。斜軸回転モードは、拡張された大振幅コリオリ相互作用と考えることができ、 $K$  混合に与える影響を定量的に調べることも今後の課題である。

### 3. 中性子過剰核におけるガンマトンネリング確率

質量数180領域原子核において、これまで観測された核異性体は、ほとんどが安定核、もしくは、安定核よりも中性子不足側にある。これは、実験的に中性子過剰核を生成することが困難なためである。一方、近年、深部非弾性散乱反応や、不安定核ビームを用いた核反応により中性子過剰核の核構造研究が可能になってきた。そこで、中性子過剰核についても、ガンマトンネリングの確率を計算し、その同位体依存性を調べた。ガンマトンネリング模型では、hindrance ファクター  $F$  と作用  $W$  は、 $\log F \propto 2W/h$  の関係にあるため、作用、もしくは、トンネリング確率は、 $K$  混合に対して最も重要な要素となる[10]。図1に、Dy、Er、Yb、Hf、W、および、Os 原子核の  $I^\pi = 10^+$  状態のガンマトンネリングにおける作用の同位体依存性を示している。作用は、中性子数104近傍で最大値をとり、その後、中性子数の増加とともに減少する。大きな作用は、原子核形がガンマ変形に対して安定していることを意味する。したがって、この領域では、中性子数104、106をもつ  $^{170}\text{Dy}$ 、 $^{172}\text{Dy}$ 、 $^{172}\text{Er}$ 、 $^{174}\text{Er}$  が、特に安定した変形をもつことが解る。

また、図1から解るように、中性子数102以上をもつ Dy、Er、および、Yb 原子核において、作用が比較的小さくなる。したがって、もし、これらの原子核に核異性体が存在すれば、大きな  $K$  量子数の差をもつ基底状態回転帯へ遷移が存在する可能性がある。そのような遷移が観測できれば、2節で紹介したガンマトンネリング模型のさらなる検証を行うことができる。

$^{170}\text{Dy}$  原子核は、陽子数66、中性子数104をもち、単一粒子エネルギー準位において、陽子、中性子ともに殻(陽子数:50と82、中性子数:82と126で、魔法数と呼ばれている)の中心にあるため、最も興味をもたれている核の一つである。一般に、魔法数から遠ざかるにしたがい原子核は変形する。したがって、この領域では、 $^{170}\text{Dy}$  原子核の近傍で最も安定した変形状態が現れると期待できる。ガンマトンネリングの計算結果(図1)も、 $^{170}\text{Dy}$  原子核は、 $W=12 \sim 13$  の大きな値を示し、ガンマ変形に対して非常に安定した状態であることを示している。また、図2に、 $^{170}\text{Dy}$  原子核における作用のスピンの依存性を描いている。作用は、スピンとともに増加し、スピン20で最大値  $W=13$  となり、それ以降はゆるやかに減少する。このような大きな作用をもつことは、 $^{170}\text{Dy}$  原子核が高スピン状態でも非常に安定した変形をしていることを意味し、長寿命の高スピン核異性体が存在することを示唆している。

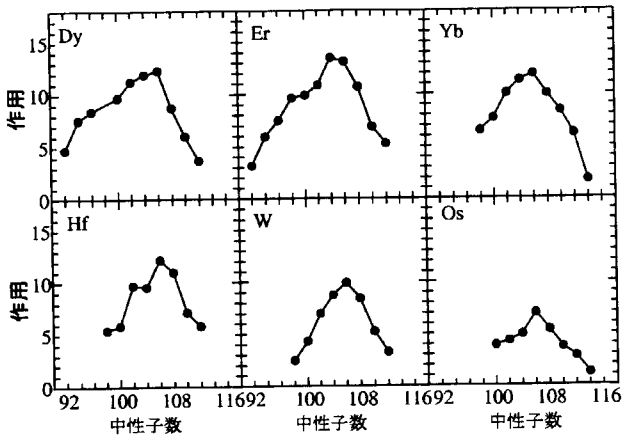


図1. Dy, Er, Yb, Hf, W, および, Os 原子核の  $I^\pi = 10^+$  状態のガンマトネリングにおける最小作用の同位体依存性

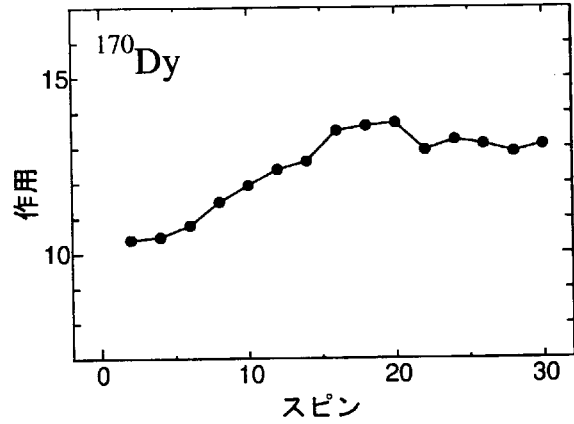


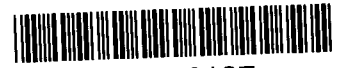
図2.  $^{170}\text{Dy}$  原子核の正パリティ状態のガンマトネリングに対する作用のスピンの依存性

4. まとめ

核異性体の崩壊メカニズムを明らかにするため、ガンマ変形方向の自由度を取り入れた量子トンネリング確率の計算を行った。その結果、大きな  $K$  量子数の変化を伴う ( $\Delta K$  が10以上) 遷移に対して、実験値と計算値の良い一致を得ることができ、このような遷移については、ガンマ変形不安定性が  $K$  混合に対して重要であることが解った。また、中性子過剰核においても、ガンマトネリング確率の計算を行い、 $^{170}\text{Dy}$  核の近傍において、作用  $W$  が最も大きくなり、長寿命の核異性体が存在する可能性があることが解った。

Reference

[1] T. Shizuma *et al.*, JAERI-Conf 2002-008 (2002) 100  
 [2] K.E.G. Lobner, Phys. Lett. 26B (1968) 369  
 [3] B. Crowell *et al.*, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1164, and references therein  
 [4] K. Narimatsu, Y.R. Shimizu, T. Shizuma, Nucl. Phys. A601 (1996) 69  
 [5] T. Shizuma *et al.*, Nucl. Phys. A626 (1997) 760  
 [6] T. Shizuma *et al.*, Nucl. Phys. A696 (2001) 337  
 [7] T. Shizuma *et al.*, Phys. Rev. C65 (2002) 064310  
 [8] T. Shizuma *et al.*, Nucl. Phys. A593 (1997) 247  
 [9] T. Shizuma *et al.*, Phys. Lett. B442 (1998) 53  
 [10] T. Shizuma *et al.*, J. of Nucl. Sci. and Tech., 39 (2002) 1137



3.2.4 p 過程と s 過程間の経験則の発見

早川 岳人、  
 日本原子力研究所/国立天文台  
 静岡 俊行  
 日本原子力研究所  
 梶野 敏貴  
 国立天文台

Discovery of universal scaling relationships  
 between p- and s-process nuclides

T.HAYAKAWA  
 Japan Atomic Energy Research Ins./National Astronomical Observatory  
 T.SHIZUMA  
 Japan Atomic Energy Research Ins.  
 T.KAJINO  
 National Astronomical Observatory

太陽系を構成する重元素の大部分は、太陽系が生成される以前の銀河系内の様々な恒星の中で生成された。恒星は星間ガスの中から誕生し、一定の条件下で重元素を生成する。そして、生成した元素を超新星爆発等によって放出して星間ガスに還元する。この生成と消滅を繰り返し、銀河系全体の重元素の量を増やしてきた。

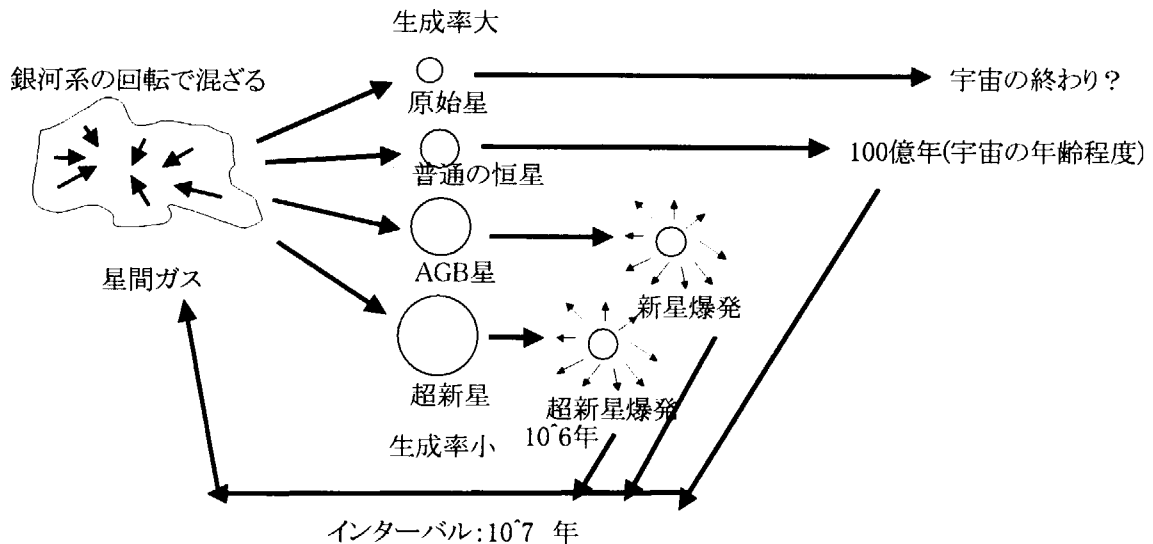


図 1 恒星の一生と元素合成過程

太陽系は過去の元素合成の記録なので、太陽系を構成する重元素の起源を研究することは、銀河系の化学的進化の理解に対して極めて重要である。一般に鉄より重い重元素の約 99%は、主に中規模の質量をもつ AGB 星でのゆっくりした中性子捕獲反応による s 過程、超新星爆発の膨大な中性子が発生する環境で、急速に中性子捕獲反応が進むと考えられている r 過程によって主に生成される[1]。

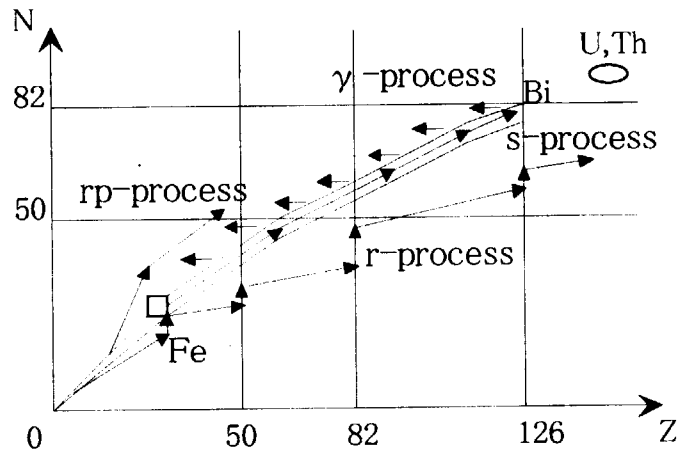


図2 主な元素合成過程の流れ

太陽系には、陽子過剰領域側に非常に小さな同位体比を持つ(0.1~1%)安定核が存在しており、それらはs過程とr過程では生成できない。これらの安定同位体をp核と呼び、p核の元素合成過程をp過程と呼ぶ。このようなp核の存在と問題はBBWHによって1957年には指摘された[2]。その後、p核の起源をめぐって50年間に渡って様々な核反応、天体環境が提案されてきたが決着がつかない。γ過程と呼ばれる超新星爆発時の膨大な光が発生する環境下で、(γ,n)反応を中心とした光核反応による生成過程、ノヴァ、中性子星のX線バースト、ブラックホールのディスク等での、急速な連続した陽子捕獲反応後のベータ崩壊でp核を生成するrp過程、太陽フレアで放出された陽子や、C/O白色わい星などでの光核反応を伴った陽子等による陽子捕獲反応過程、超新星爆発のコアの爆縮に伴うニュートリノ風によるニュートリノ過程などが提案された主なモデルである。特にγ過程のモデル計算は太陽系におけるp核の絶対量を計算することはできないが、p核通しの相対的な傾向を再現することに成功するなどの成果を上げた。しかし、いずれもモデル依存性が高く、実験・観測等による、より直接的な証拠が無かった。

そのような状況下で、太陽系同位体比の解析を行い、次に述べる経験則の発見を行った。p核より中性子数が2個大きい安定同位体がs核であるペアが多数存在している。その同位体比  $N(s)/N(p)$  を計算すると、質量数50から180の広い領域に渡って約23:1の比、質量数180以上の領域では80:1になっていることが判明した。すなわち、同位体間に強い相関が存在している。この強い相関はp核がs核より主に(γ,n)反応のような中性子数のみを変更する核反応で生成されたことを意味する。先ほど上げたシナリオでは、陽子捕獲反応や、rp過程は、陽子数が変わる。そのため、このような陽子数が同じである同位体間に相関がないはずである。ニュートリノ過程は、(ν,ν'n)反応のように中性子数を変える反応も起きるが、同時に(ν,ν'p)反応や、(ν,e<sup>-</sup>)反応のように陽子数を変える反応も同時に起きるはずなので、明確な同位体間の相関が表れ難い。また、過去の計算によってニュートリノ過程の効果は、同時に起きると考えられるγ過程に比べて元素合成に対する貢献が低いと考えられている既に述べたモデルの中で最も適合するのは、超新星爆発の膨大な光が存在する環境下での(γ,n)反応を中心としてp核が生成されるγ過程である。そのため、s核とp核の強い相関は、p核がγ過程で生成されてことを強く示す全く新しい証拠である。ここで、太陽系存在比が過去の多数の測定・分析結果であり、信頼できる値である点と、この解析は全くモデル非依存である点を指摘したい。

p核とs核の太陽系存在比のプロットは過去の研究でも当然のことながら行われてきた。1984年のFowlerの論文中の図2は1950年代から使われている有名な図であるが、p核とs核の間に相関は認められない[1,2]。最近の $\gamma$ 過程の論文においても、より精密な図が掲載されているが、同様に相関があると認識されていない[3,4]。 $\gamma$ 過程においては、超新星爆発で、種核となる重元素は、その超新星爆発が起きる大質量星が誕生する以前の過去の恒星において生成されている。したがって、重元素の領域においては、s核だけでなくr核が多量に存在しており、この両方がp核の生成に寄与すると考えられている。そのため、p核と特にs核の間に相関があるはずだという考えそのものが無く、追求が行われていなかったと思われる。

この $N(s)/N(p)$ はs過程とp過程の頻度、すなわち超新星爆発の銀河系における発生頻度に強く関連した値であり、単体の元素合成イベントによる生成物の研究を進めることで、銀河系の進化モデルに寄与する。今後、 $N(s)/N(p)$ が一定であることを再現するモデルの構築が待望される。このようなモデルは、p過程の解明だけでなく、p過程が発生する超新星爆発の環境への理解、銀河系における超新星爆発の発生頻度等にも貢献すると期待される。

また、この経験則が宇宙において普遍的あるかどうかは非常に興味深い問題である。すでに述べた単純なモデルが正しければ $N(s)/N(p)$ の値自体は異なるが、広い質量領域で一定であることが他の天体において期待される。この問題に答えを得るためには、天体観測によってp核の同位体分離を行う必要がある。近年、天体観測技術の発達によって、元素の観測だけでなくLiやEuにおいて同位体分離が行われるようになってきた。そこで、Inの同位体分離を伴った天体観測を提案した。Inは奇核であり2個しか同位体がないために同位体分離が原理的に可能である。また、In元素のp核は約4%であり、他のp核の同位体比より大きい。さらに、太陽系に存在するs核がAGB星起源であることから、シングルイベントではp核の存在量が太陽系より大きい。そのため、4%の数倍の存在比が期待できる。しかし、Inの生成過程はs過程、r過程の寄与が考えられるので、中性子捕獲反応断面積の測定等を行う必要がある。

最後に実験の重要性と現状について述べたい。 $\gamma$ 過程計算では、光核反応断面積の系統的な実験データが重要である。超新星爆発での光子のエネルギー分布は熱プランク分布に従うと考えられるが、超新星爆発の高温化では、よりエネルギーの低い光子の方が非常に多い。そのため、中性子離別エネルギー近傍の小さい反応断面積の正確な値が重要になってきている。過去に行われてきた( $\gamma, n$ )反応の実験は、GDR領域に焦点が当てられていたために、中性子離別エネルギー近傍のデータの精度が低い。近年、この観点から測定が始まったばかりであり実験データは非常に少ない[5-7]。その中で、エネルギー分解能の高いレーザー逆コンプトンガンマ線による実験が初めて行われた[7]。

#### Reference

- [1] W. A. Fowler, *et al.*, Rev. Mod. Phys. 56, 149 (1984).
- [2] E. M. Burbidge, *et al.*, Rev. Mod. Phys. 29, 547 (1957).
- [3] D. L. Lambert. Astron. Astrophys. Rev. 3, 201 (1992).
- [4] M. Arnould and S. Goriely, Phys. Rep. to be published.
- [5] P. Mohr, *et al.*, Phys. Lett. B488, 127 (2000).
- [6] K. Vogt, *et al.*, Nucl. Phys. A707, 241 (2002).
- [7] H. Utsunomiya, *et al.*, Phy. Rev. C67, 015807 (2003).



3.2.5  $^{136}\text{Ba}$  における  $10^+$  アイソマー

甘 再国、藤 暢輔<sup>A</sup>、小川建吾<sup>B</sup>、中田 仁<sup>B</sup>、大島真澄<sup>A</sup>、静岡俊行<sup>A</sup>、早川岳人<sup>A</sup>、  
宇都野穰<sup>A</sup>、長 明彦<sup>A</sup>、初川雄一<sup>A</sup>、石井哲郎<sup>A</sup>、草刈英榮<sup>B</sup>、菅原昌彦<sup>C</sup>、劉 忠、張 玉虎  
中国近代物理研、原研<sup>A</sup>、千葉大<sup>B</sup>、千葉工大<sup>C</sup>

A new isomer in  $^{136}\text{Ba}$  populated by deep-inelastic collisions

Z. GAN, Y. TOH, K. OGAWA, H. NAKADA, M. OSHIMA, T. SHIZUMA, T. HAYAKAWA,  
Y. UTSUNO, A. OSA, Y. HATSUKAWA, T. ISHII, H. KUSAKARI, M. SUGAWARA,  
Z. LIU, Y.H. ZHANG

Inst. of Mod. Phys. China, JAERI, Chiba Univ., Chiba Inst. of Tec.

## 1. はじめに

中性子数 80 である  $^{136}\text{Ba}$  は、振動から回転的な構造に移り変わる遷移領域に属する核である。そのため、その核構造を解明する事により集団的な自由度と単一粒子の自由度間の相互作用に関する知見が得られる。中性子数 80 の同調体である  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{134}\text{Xe}$ [1] 及び  $^{138}\text{Ce}$ [2] においては  $\nu(h_{11/2})^{-2}$  によるイラスト  $10^+$  アイソマーが見出されている。 $^{136}\text{Ba}$  の  $10^+$  のアイソマーの存在が期待されるが、実験的な困難さから高スピン状態を作り出すことが出来ないうために、このアイソマーは見出されていなかった。

## 2. 実験及び解析

$^{136}\text{Ba}$  の励起状態は、原研タンデム・ブースター加速器によって供給される 430MeV の  $^{82}\text{Se}$  ビームと  $^{139}\text{La}$  ターゲットによる深部非弾性散乱(DIC)によって得られた。DIC はクーロンバリアより 15%以上高いエネルギーのビームを用いた反応であるが、適度な角運動量を持ち込め、中性子過剰核を含む非常に多くの核が生成されるという特徴がある。このため、融合蒸発反応で生成できない核のアイソマーの研究には最適の実験手法である。ターゲットは、内部で反跳核を静止させるために  $>100\text{mg}/\text{cm}^2$  の厚さのセルフサポートターゲットを用いた。放出される  $\gamma$  線は 12 台のアンチコンプトンサプレッサー付き HPGe 検出器

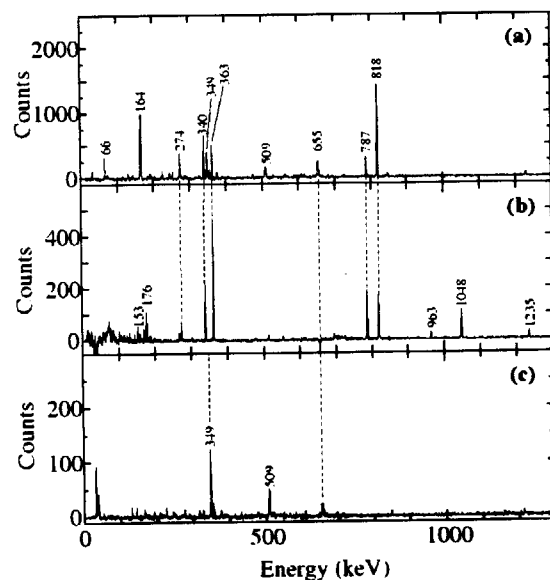


図 1.  $^{136}\text{Ba}$  の  $\gamma$  線スペクトル

a) 1048keV-gated スペクトル b) プロンプトスペクトル c) ディレイドスペクトル

表 1.  $\gamma$  線エネルギー、DCO 比及び強度

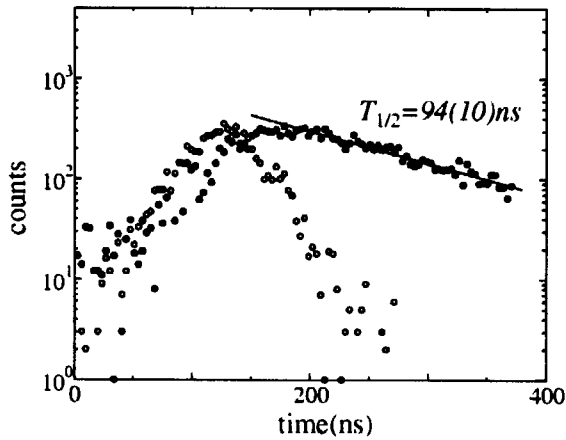


図 2. 3356keV 準位の崩壊曲線

(GEMINI) [3] によって検出した。それぞれの HPGe 検出器はビーム軸に対して 32° (2 台)、58° (2)、90° (4)、122° (2) 及び 148° (2) の角度で設置されている。<sup>60</sup>Co の 1.33MeV の  $\gamma$  線に対する典型的なエネルギー分解能は 2.4keV である。2 つ以上の  $\gamma$  線を同時計測した場合に、

$E_\gamma$ (keV)	DCO	transition	$I_\gamma$
66.9		$6^+ \rightarrow 5^-$	10.6(0.7)
86.3		$5^- \rightarrow 4^+$	6.2(0.5)
153.2	0.65	$6^+ \rightarrow 4^+$	6.8(0.5)
163.9	0.56	$7^- \rightarrow 4^+$	12.4(0.2)
176.9	0.68	$6^+ \rightarrow 7^-$	16.2(0.7)
273.6	0.81	$5^- \rightarrow 4^+$	13.3(0.6)
340.5	0.88	$6^+ \rightarrow 4^+$	48(2)
349.2			70(2)
362.7	0.94	$10^+ \rightarrow 8^+$	46(2)
508.9			40(2)
787.0	0.87	$8^+ \rightarrow 6^+$	85(3)
818.5	1.18	$2^+ \rightarrow 0^+$	100(3)
963.6	0.93	$8^+ \rightarrow 7^-$	8.4(0.7)
1048.1	1.03	$4^+ \rightarrow 2^+$	75(3)
1235.4	1.00	$4^+ \rightarrow 2^+$	25(2)

そのエネルギーとタイミングが磁気テープに記録される。同時計測の時間幅を 400ns に設定した為、100ns 以下程度の寿命を測定することが出来る。エネルギー補正は <sup>133</sup>Ba と <sup>152</sup>Eu によって行った。プロンプト-プロンプトとプロンプト-ディレイドの 2次元マトリクスを解析し、励起準位を構築した。 $\gamma$  遷移エネルギー、強度及び DCO 比を表 1 に示す。2206keV の励起準位以下の  $\gamma$  遷移は、以前の研究によって既に知られていたものと一致した[4]。本研究において新たに見出された準位に関する、349, 363, 509, 787 及び 963keV の  $\gamma$  遷移が <sup>136</sup>Ba の既知の  $\gamma$  線との同時測定によって同定された (図 1a 参照)。プロンプト-ディレイドマトリクスの解析によって、3356keV 励起準位がアイソマーであることが明らかになった。363, 787 及び 963keV の  $\gamma$  遷移はプロンプトスペクトルにおいて見出された (図 1b 参照)。363 及び 787keV の  $\gamma$  線は新しく見出したアイソマー準位と 2993keV 励起準位、2993keV 励起準位と既知の  $6^+$  励起準位をそれぞれ繋ぐ。この 363 及び 787keV の  $\gamma$  線の関係は 963keV の遷移によって決定された。さらに 363 及び 787keV  $\gamma$  線遷移の DCO 比は  $\Delta I=2$  と一致する為、2993keV 励起準位が  $I=8$ 、3356keV アイソマー準位が  $I=10$  と決定される。アイソマー準位より上は 349, 509keV の  $\gamma$  線遷移が見出された (図 1c 参照)。 $10^+$  のアイソマーの寿命を決定するために、図 2 に示すアイソマー準位の崩壊曲線を求めた。この崩壊曲線より傾斜法によってその半減期を  $T_{1/2}=94(10)$  ns と決定した。

### 3. 考察

<sup>136</sup>Ba の  $10^+$  アイソマー準位から遷移する  $\gamma$  線の換算遷移確率は  $B(E2)=0.02$  W. u. であった。 $N=80$  の同調体の  $10^+$  準位における換算遷移確率と比べると <sup>132</sup>Te (1.1W. u.), <sup>134</sup>Xe (0.64W. u.),

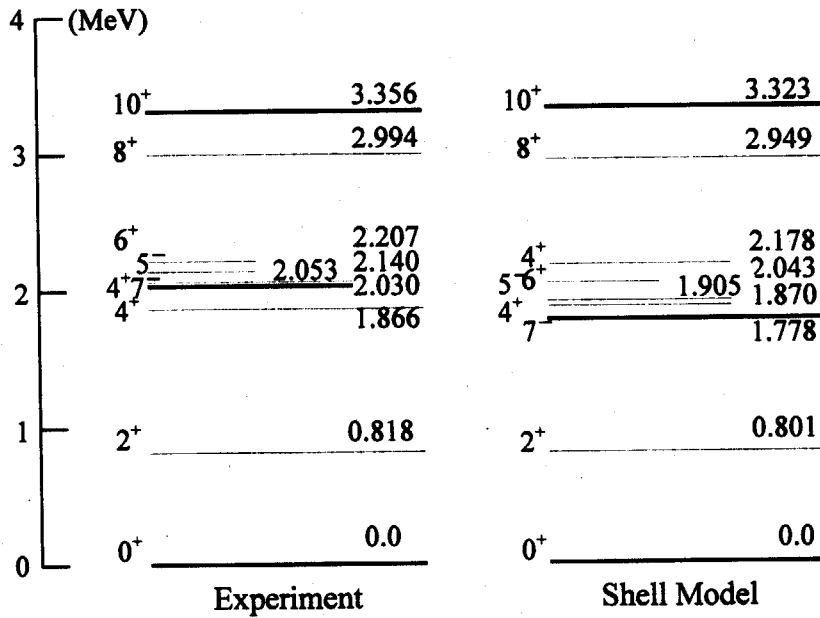


図 3. <sup>136</sup>Ba の実験及び理論計算による励起準位

<sup>138</sup>Ce(0.01W.u.) となっており、<sup>132</sup>Te と <sup>134</sup>Xe に比べて、<sup>136</sup>Ba と <sup>138</sup>Ce は非常に抑制されている。この原因を明らかにするために、ShellModel による理論計算を行った。配位として陽子は (g(7/2), 1d(5/2))<sup>(z-r)</sup> (2s(1/2), 0h(11/2), 1d(3/2))<sup>r</sup>, r=0, 1, 2, 3, 4 であり、total seniority は 4 以下としている。また中性子は (2s(1/2), 0h(11/2), 1d(3/2))<sup>n</sup> とし、

コアが <sup>132</sup>Sn である為、それぞれ z=6, n=2 となる。パラメータは近傍の核の実験値を計算値によって良く再現するように選んだ。実験によって得られたレベルスキームと理論計算によって得られたものを図 3 に示す。4<sup>+</sup> と 6<sup>+</sup> が非常に接近し、そのすぐ近傍に 4<sub>2</sub><sup>+</sup> や 5<sup>+</sup> 及び 7<sup>+</sup> が存在するといった特徴や、6<sup>+</sup> と 8<sup>+</sup> のエネルギー間隔が比較的に大きいものに対し、8<sup>+</sup> と 10<sup>+</sup> が近接しているという特徴なども良く再現されている。また <sup>132</sup>Te, <sup>134</sup>Xe, <sup>136</sup>Ba における B(E2) の実験値と計算値を表 2 に示す。実効電荷は ep=2.3e, en=1.6e としてある。10<sup>+</sup>→8<sup>+</sup> の B(E2) の計算値は <sup>132</sup>Te で 3.4W.u. であり、<sup>134</sup>Xe で 4.7W.u. であるのに対し、<sup>136</sup>Ba で 2.3×10<sup>-5</sup>W.u. と非常に抑制されており、実験値を定性的に良く再現している。この時の 10<sup>+</sup> の励起準位の波動関数は Jp=0<sup>+</sup>, Jn=10<sup>+</sup> で、J=10<sup>+</sup> に組んでいるものが 73% 程度を占めている。しかも、Jn=10<sup>+</sup> は殆ど h(11/2)<sup>-2</sup> (Jn=10<sup>+</sup>) 状態である。また、8<sup>+</sup> の励起準位は Jp=6<sup>+</sup>, Jn=2<sup>+</sup> で、J=8<sup>+</sup> に組んでいるものが 90% 程度を占めている。この様に <sup>136</sup>Ba の励起準位においては、10<sup>+</sup> と 8<sup>+</sup> の配位が大きく異なることが、この準位間の γ 遷移を抑制していると考えられる。

表 2. <sup>136</sup>Ba 近傍核の B(E2) の実験値及び理論計算値

	<sup>132</sup> Te <sub>80</sub>		<sup>134</sup> Xe <sub>80</sub>		<sup>136</sup> Ba <sub>80</sub>	
	Exp(W.u.)	Cal(W.u.)	Exp(W.u.)	Cal(W.u.)	Exp(W.u.)	Cal(W.u.)
2 <sup>+</sup> →0 <sup>+</sup>	-	14.6	24.7	23.0	28.9	29.1
4 <sup>+</sup> →2 <sup>+</sup>	-	8.8	-	1.1	-	0.63
6 <sup>+</sup> →4 <sup>+</sup>	12.0	5.9	-	0.8	0.98	0.01
10 <sup>+</sup> →8 <sup>+</sup>	1.1	3.4	0.64	4.7	0.02	2.3E-5

ep=2.3e, en=1.6e

Reference

- [1] J. Genevey, et. al., Phys. Rev. C 63 (2001) 054315.
- [2] M. Muller-Veggian, et. al., Nucl Phys. A304 (1978) 1.
- [3] K. Furuno, et. al., Nucl. Instr. Meth. A421 (1999) 211.
- [4] A.R. Farlen, et. al., Nucl. Data Sheets, 71 (1994) 1.



## 3.2.6 A=180 領域 Ir 核の指標逆転現象

<sup>a</sup>Y. H. ZHANG, <sup>b</sup>森川恒安, <sup>c</sup>大島真澄, <sup>c</sup>藤暢輔,<sup>c</sup>小泉光生, <sup>c</sup>長明彦, <sup>c</sup>静間俊行, <sup>c</sup>早川岳人,<sup>d</sup>菅原昌彦, <sup>e</sup>草刈英榮, <sup>f</sup>S. S. WEN, and <sup>f</sup>L. H. ZHU<sup>a</sup>近代物理研(蘭州), <sup>b</sup>九州大, <sup>c</sup>原研, <sup>d</sup>千葉工大, <sup>e</sup>千葉大, <sup>f</sup>中国原研(北京)

## Signature Inversion in A ~ 180 Ir Nuclei

<sup>a</sup>Y. H. ZHANG, <sup>b</sup>T. MORIKAWA, <sup>c</sup>M. OSHIMA, <sup>c</sup>Y. TOH,<sup>c</sup>M. KOIZUMI, <sup>c</sup>A. OSA, <sup>c</sup>T. SHIZUMA, <sup>c</sup>T. HAYAKAWA,<sup>d</sup>M. SUGAWARA, <sup>e</sup>H. KUSAKARI, <sup>f</sup>S. S. WEN, and <sup>f</sup>L. H. ZHU<sup>a</sup>Inst. of Modern Physics (Lanzhou, China), <sup>b</sup>Kyushu Univ., <sup>c</sup>JAERI,<sup>d</sup>Chiba Inst. of Tech., <sup>e</sup>Chiba Univ., <sup>f</sup>China Inst. of Atomic Energy (Beijing, China)

変形した奇奇核においては陽子と中性子の配位の自由度により多くの回転バンドが現れる。指標逆転現象 [1] はこうした回転バンドに現れる興味深い現象の一つである。回転軸回りの 180° 回転に対する偶奇性の量子数を指標と呼び、一つの陽子(あるいは中性子)の配位を有する  $\Delta I = 1$  の回転バンドは、原子核の回転に伴って 'favored' と 'unfavored' の  $\Delta I = 2$  の 2 本のバンドに分岐する。このとき回転速度の増大とともにコリオリ力の影響でエネルギーの分岐は増大し、'favored' の方が 'unfavored' に対してエネルギーが低くなる。

奇奇核では陽子、中性子各々についての 'favored(f)', 'unfavored(u)' の組み合わせとして (f,f), (f,u), (u,f), (u,u) の場合が生じるが、通常は (f,f) と、(f,u) あるいは (u,f) のどちらか一方が観測される。指標逆転とは 'favored' と 'unfavored' のバンドのエネルギーの上下関係が逆転し、ある角速度の範囲内で 'unfavored' の方がエネルギーが低くなる現象を指し、'triaxial' な変形や  $p$ - $n$  残留相互作用などが原因だと考えられている。

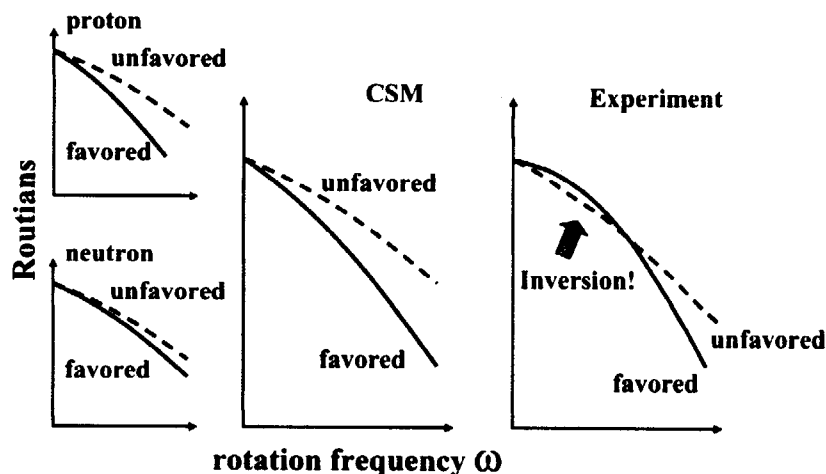


図 1. 指標量子数によるエネルギー準位の分岐。中央は Cranked Shell Model(CSM) による予想。右端は実験で見いだされている指標逆転。

指標逆転現象は質量数  $A \sim 80, 130, 160$  領域において  $\pi g_{9/2} \otimes \nu g_{9/2}$ 、 $\pi h_{11/2} \otimes \nu h_{11/2}$ 、 $\pi h_{11/2} \otimes \nu i_{13/2}$ 、あるいは  $\pi g_{9/2} \otimes \nu i_{13/2}$  の配位を有する回転バンドで知られている。これらの配位はいずれも *high-j* 軌道が関与していることから、同様の *high-j* 軌道が関与した他の質量数領域でも指標逆転が起こると期待される [2]。実際、最近になって我々や他のグループの実験により  $^{178}\text{Ir}$ [3, 4, 5] と  $^{182}\text{Au}$ [6] の  $\pi i_{13/2} \otimes \nu i_{13/2}$  バンドで指標逆転現象が見いだされた。こうした質量数 180 領域に於いての指標逆転現象の系統性を明らかにし、詳細に調べるために我々は更に  $^{176}\text{Ir}$  について実験を行った。

実験は原研タンデムにおいて行った。5.5 mg/cm<sup>2</sup> の Pb バッキング付きの 2.1 mg/cm<sup>2</sup>  $^{149}\text{Sm}$  薄膜をタンデムからの  $^{31}\text{P}$  ビームで照射して、生成核からのガンマ線を BGO-Ge クリスタルボール GEMINI[7] で測定した。測定に使用した Ge 検出器は HP-Ge が 11 台と X 線測定用の LOAX-Ge が 1 台である。 $^{31}\text{P}$  ビームの最適なエネルギーを決めるために、あらかじめ励起関数の測定を  $X-\gamma$  同時計数法により行い、ビームエネルギー 155 MeV のもとで  $\gamma-\gamma$  同時計数法により約  $3.5 \times 10^8$  イベントの 2Fold データを DAT メディアへ記録した。測定の後 Offline Sorting により  $4k \times 4k$  の  $\gamma-\gamma$  2次元マトリクスを作成し、Coincidence 関係、ガンマ線の Intensity バランス、近傍の核の準位・バンド構造との比較などを基にバンドの同定を行って、図 2 に示すような  $^{176}\text{Ir}$  の準位図を構築した。

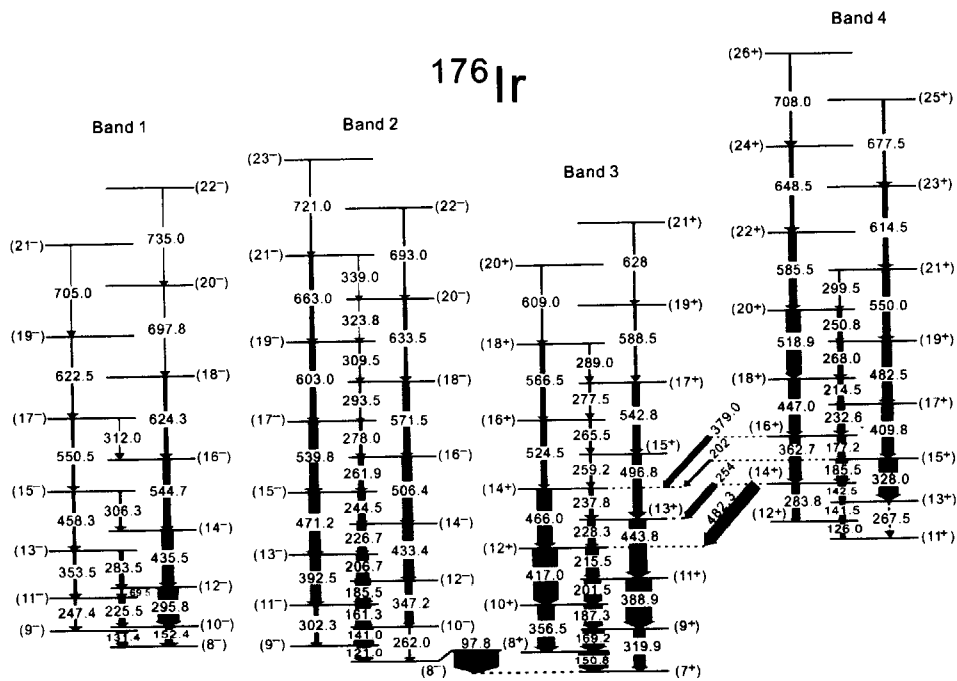


図 2. 今回の実験で得られた  $^{176}\text{Ir}$  の高スピン準位図。

これらのバンドについてのスピンパリティの同定は主としてガンマ線遷移の DCO 比に基づいて行っている。さらに Kreiner[8] らの奇奇核における Coupling Scheme Classification、および、両隣の奇核における一粒子配位のバンド、すなわち  $^{175}\text{Ir}$ [9] における  $\pi 1/2^-$ [541]、 $\pi 9/2^-$ [514]、 $\pi 1/2^+$ [660] の各バンドの準位と  $^{175}\text{Os}$ [10] における  $\nu 1/2^-$ [521]、 $\nu 1/2^-$ [512]、 $\nu 7/2^+$ [633] の各バンドの準位との比較を行うことで、今回の  $^{176}\text{Ir}$  の 4 つのバンドにおける陽子および中性子の配位を以下のように推定した。

$$\begin{aligned} \text{Band 1: } & \pi h_{9/2}(1/2^- [541]) \otimes \nu i_{13/2}(7/2^+ [633]) \\ \text{Band 2: } & \pi h_{11/2}(9/2^- [514]) \otimes \nu i_{13/2}(7/2^+ [633]) \\ \text{Band 3: } & \pi h_{11/2}(9/2^- [514]) \otimes \nu h_{9/2}(5/2^- [512]) \\ \text{Band 4: } & \pi i_{13/2}(1/2^+ [660]) \otimes \nu i_{13/2}(7/2^+ [633]) \end{aligned}$$

Band 1 については Crossing の遅れ ( $\pi 1/2^-$ [541]  $\otimes$   $\nu 7/2^+$ [633] 配位に見られる)、大きな指標分離 (*high-j* 軌道の関与)、さらにこの配位を仮定した Geometric Model で B(M1)/B(E2) の実験値の再現性がよい点などを考慮すると、上記の推定は確からしいと考えられる。同様に Band 2-4 についても、上記のような配位を仮定することで、今回の実験で見いだされた準位やガンマ線遷移を矛盾なく説明できる。

$^{176}\text{Ir}$  と  $^{178}\text{Ir}$  に見られる指標逆転の様子を図 3 に示す。 $\pi h_{9/2} \otimes \nu i_{13/2}$  のバンドでは低いスピン領域で起きていた指標逆転が、あるスピン ( $I_c$ ) より上の準位では解消されているが、 $^{178}\text{Ir}$  では  $21\hbar$ 、 $^{176}\text{Ir}$  では  $18\hbar$  と、 $I_c$  の値に違いがある。しかしながら  $^{176}\text{Ir}$  が  $^{178}\text{Ir}$  と比較して中性子が 2 個少なく、(1) Fermi 面が *Low- $\Omega$*  軌道である  $\nu i_{13/2}(1/2^+ [660])$  に近いために、この軌道の混ざりがより大きいこと、また (2) 偶偶核のコア ( $^{174}\text{Os}$ ,  $^{176}\text{Os}$ ) の変形がより小さいことから [11]、コリオリ力による逆転の解消がより低いスピンの起きると期待されるため、両者の  $I_c$  の違いは定性的に理解できる。

一方、 $\pi i_{13/2} \otimes \nu i_{13/2}$  バンドでは陽子・中性子が同じ  $j$  の軌道に入り、 $\pi h_{9/2} \otimes \nu i_{13/2}$  と比較して (指標逆転に寄与していると考えられる)  $p$ - $n$  相互作用がより強いと期待されるため、より高いスピンまで逆転が維持される可能性がある。今回の実験結果はこの予想とは矛盾していない。しかしながら  $\pi i_{13/2} \otimes \nu i_{13/2}$  バンドでは、( $^{178}\text{Ir}$  では  $I_c = 25.5\hbar$  で逆転が解消されているのに対して)  $^{176}\text{Ir}$  では  $J^\pi = 25\hbar$  に到るまで逆転が解消されておらず、これまでの議論の範囲内では説明が困難であり、さらなる研究が必要であることを示している。

今後もさらに実験を進め、この領域のより多くの核について系統的な測定を行い、この領域での指標現象について明らかにしていきたい。

この研究は National Natural Science Foundation of China (grant No. 10025525) および the Major State Basic Research Development Program of China (Contract No. G2000077400) のサポートを受けている。

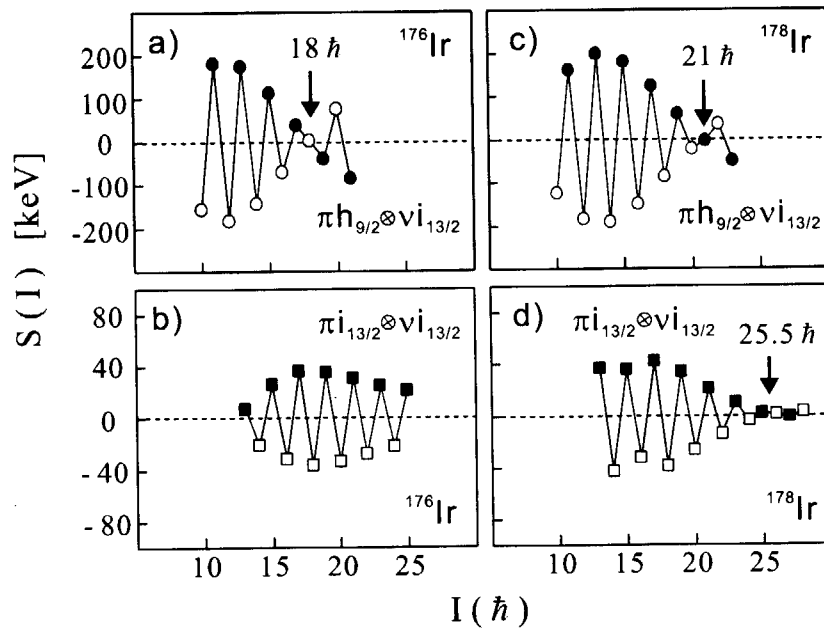


図3.  $^{176}\text{Ir}$  核と  $^{178}\text{Ir}$  核における指標逆転の比較。上段が  $\pi h_{9/2} \otimes \nu i_{13/2}$  バンド、下段が  $\pi i_{13/2} \otimes \nu i_{13/2}$  バンドについての指標分離のスピンの依存性を示す。黒が 'favored'、白が 'unfavored' に対応し、白が下側にきていれば指標逆転が起きていることを表している。

## References

- [1] R. Bengtsson et al., Nucl. Phys. **A415**, 189 (1984).
- [2] R. A. Bark et al., Phys. Lett. **B 406**, 193 (1997).
- [3] D. Hojman et al., Eur. Phys. J. **A10**, 245 (2001).
- [4] Y. H. Zhang et al., Eur. Phys. J. **A 8**, 439 (2000).
- [5] Y. H. Zhang et al., Chin. Phys. Lett. **18**, 1323 (2001).
- [6] Y. H. Zhang et al., Proc. of 8<sup>th</sup> National Conf. on Nucl. Structure, 24<sup>th</sup> - 31<sup>st</sup> Mar. 2000 Hakou, China, and High Energy Phys. & Nucl. Phys. supp. 37 (2000) (in Chinese).
- [7] K. Furuno et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **A421**, 211 (1999).
- [8] A. J. Kreiner et al., Phys. Rev. **C36**, 2309 (1987).
- [9] G. D. Dracoulis et al., Nucl. Phys. **A534**, 173 (1991).
- [10] B. Fabricius et al., Nucl. Phys. **A511**, 345 (1990).
- [11] R. Bengtsson, Proc. of Int'l Conf. on High Spin Physics and Gamma-Soft Nuclei, Pittsburgh, USA, 1990, ed. J.X. Saladin, R.A. Sorensen, C.M. Vincent (World Scientific, Singapore, 1990) p289.



### 3.2.7 Fusion Measurements for the Reactions $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$ and $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$

#### $^{86}\text{Kr}+^{134,138}\text{Ba}$ 核融合反応測定実験について

K. Satou<sup>1,2</sup>, H. Ikezoe<sup>1</sup>, S. Mitsuoka<sup>1</sup>, K. Nishio<sup>1</sup>, C. J. Lin<sup>1</sup> and S. C. Jeong<sup>3</sup>

佐藤健一郎<sup>1,2</sup>, 池添博<sup>1</sup>, 光岡真一<sup>1</sup>, 西尾勝久<sup>1</sup>, C. J. Lin<sup>1</sup>, S. C. Jeong<sup>3</sup>

1. Advanced Science Research Center, JAERI, Tokai-mura, Ibaraki 319-1195, Japan
2. Institute of Physics and Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-8577, Japan
3. Institute of Particle and Nuclear Studies, KEK, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0801, Japan
  1. 日本原子力研究所先端基礎研究センター
  2. 筑波大学物理学研究科タンデム加速器センター
  3. 高エネルギー加速器研究機構素粒子原子核研究所

#### 1. Introduction

A fusion hindrance phenomenon is characteristic in fusion reactions of heavy system where charge product of projectile and target nuclei is greater than 1800. This means that a fusion barrier effectively becomes higher than the Bass barriers with increasing the charge product, and then reacting nuclei cannot always completely fuse even though projectile surmounts the Bass barrier. The investigation of the phenomenon is important to understand the reaction mechanism between heavy nuclei. The main purpose of this study is to investigate the dependence of the fusion reaction on nuclear shell structure

So far, we had measured evaporation residue (ER) cross-sections for the reactions  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$  [1] where the nucleus  $^{138}\text{Ba}$  has a closed neutron shell  $N=82$  while  $^{134}\text{Ba}$  has a neutron number  $N=78$ , four neutron less than the closed shell. Fusion probabilities of these reactions were extracted from the measured ER cross-sections with the help of statistical calculation code HIVAP [2] that reproduces the survival probability of each ER. The fusion probability for the reaction  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$  shows a hindrance, which is consistent with the systematics of fusion hindrance [3]. On the other hand, that for the reaction  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$  shows no hindrance. It can be concluded that fusion is strongly dependent on nuclear shell structure of  $N=82$ .

To investigate the dependence more precisely, we measured the ER cross-sections for the reactions  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$ , where  $^{86}\text{Kr}$  has a closed neutron shell of  $N=50$ .

#### 2. Experimental Methods and Data Analysis

Barium carbonate targets were irradiated by  $^{86}\text{Kr}$  beams from JAERI tandem booster accelerator, and a typical beam current was 14 pA. The targets of  $^{134}\text{Ba}$  and  $^{138}\text{Ba}$  were fabricated by sputtering a barium carbonate on a thin aluminum foil of thickness  $1.3 \mu\text{m}$ . The enrichments of the barium isotope of the mass number 138 in a  $^{138}\text{Ba}$  target and the barium isotope of the mass number 134 in a  $^{134}\text{Ba}$  target were 99.7% and 88.1%, respectively.



The  $^{134}\text{Ba}$  target included the barium isotopes of the mass number of 135, 136, 137, and 138 as 5.36%, 1.21%, 1.07%, and 4.26%, respectively. The ERs emitted in the beam direction were separated in flight from the primary beams by JAERI recoil mass separator (JAERI-RMS). The energy and the position of incoming particles and their subsequent  $\alpha$ -particle decays were measured event by event by the double sided position sensitive strip detector to determined the ER cross-sections. The typical energy resolution was 72 keV. Time-of-Flight (TOF) signal of the incoming particles was also measured by two micro-channel plate detectors. The signal was used to distinguish the subsequent  $\alpha$ -particle decays from the incoming particles. The signal was also used to make a rough estimation of the ER's mass by using 2-dimensional plot of the energy and the TOF signal. The details of the experimental procedure are described elsewhere [1,4,5].

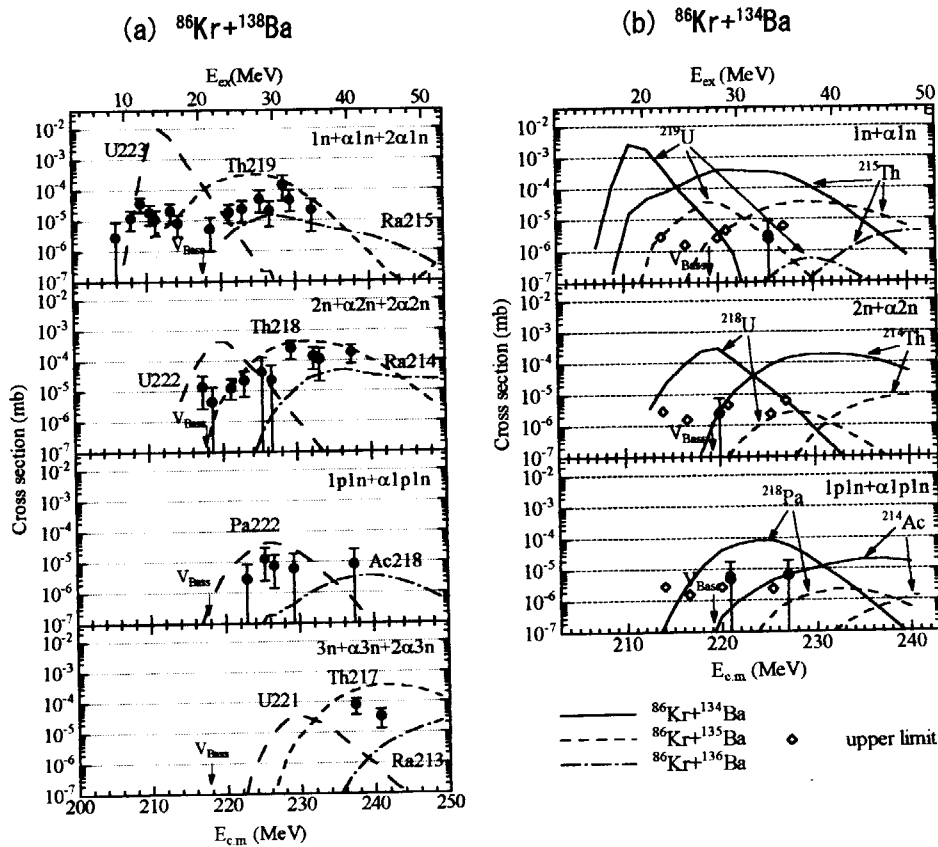


Fig.1 Evaporation residues (ERs) cross-sections for the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  (a) and the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  (b) as a function of  $E_{cm}$  (lower abscissa) and  $E_{ex}$  (upper abscissa). Lines are represent the calculated cross-sections of each ER using the code HIVAP[2]. As for the case of  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$ (b), solid, dash, and dash-dotted lines are the contributions for the isotopes  $^{134}\text{Ba}$ ,  $^{135}\text{Ba}$ , and  $^{136}\text{Ba}$ , respectively. The others contributions for the isotopes  $^{137}\text{Ba}$  and  $^{138}\text{Ba}$  are lower than 0.1nb. Solid arrows and open diamonds represent Bass barriers and upper limits.

### 3 Experimental Results and Discussions

The measured ER cross-sections for the reactions  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  are shown in

Figure 1 as a function of c.m. energy determined at the middle of the target layer together with the calculated results by using the code HIVAP. As for the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$ , the ER cross-sections of  $1n+\alpha 1n$ ,  $2n+\alpha 2n$ , and  $1p1n+\alpha 1p1n$  were determined from  $\alpha$ -particle decays of  $^{215}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Th}$ , and  $^{214}\text{Ac}$ , respectively. For the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$ , the ER cross-sections of  $1n+\alpha 1n+2\alpha 1n$ ,  $2n+\alpha 2n+2\alpha 2n$ ,  $1p1n+\alpha 1p1n$ , and  $3n+\alpha 3n+2\alpha 3n$  were determined from  $\alpha$ -particle decays of  $^{215}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Fr}$ , and  $^{217}\text{Th}$ , respectively.

We obtained the fusion probabilities from the measured ER cross-sections. The obtained fusion probabilities for the reactions  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  are shown in Figure 2. The fusion probabilities for both the reaction systems show clearly a fusion hindrance as indicated by the solid curve. Here, we use the procedure proposed by Quint et al. [3] to get the extra-extra push parameters ( $E_{xx}$ ,  $\sigma_B$ ), where  $E_{xx}$  is the extra-extra push energy and  $\sigma_B^2$  is the variance of gaussian like fusion barrier distribution. We obtained the extra-extra push parameters ( $E_{xx}$ ,  $\sigma_B$ ) = (16MeV, 6.4MeV) that are consistent with the value of Quint's systematics. On the other hand, the fusion probability for the reaction of  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  shows anomalous increase at the energy region of  $E_{ex}\leq 14\text{MeV}$ . In the energy region, the shell correction energy still remains. This anomalous increase of the fusion probability suggests that the shell correction energies of the target nucleus and the projectile nucleus play an important role in the fusion reaction as pointed out in ref. [1].

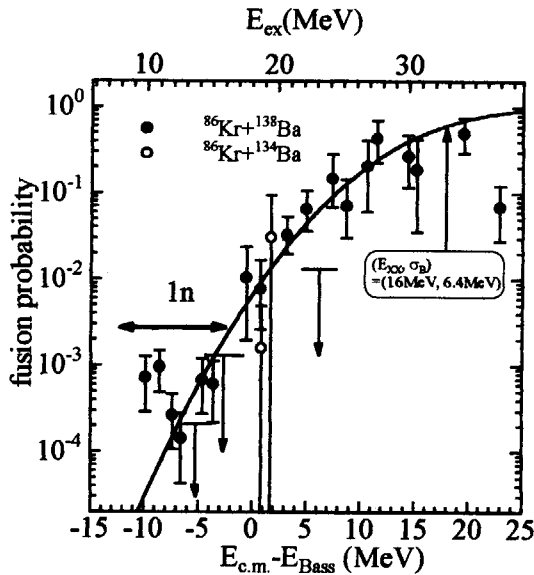


Fig.2 Fusion probability for the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  as a function of  $E_{cm}-E_{Bass}$  (lower abscissa) and  $E_{ex}$  (upper abscissa), where  $E_{Bass}$  and  $E_{ex}$  represent Bass fusion barrier and excitation energy, respectively. Solid arrows represent the upper limit for the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$

#### 4. Conclusions

At the first time, we had observed, the large difference between the fusion probabilities for the fusion reactions  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$ . It is considered that, for the reaction of  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$ , the shell effect of  $N=82$  could restrict the neck formation at contact and restrict the energy dissipation from kinetic energy to intrinsic excitation of compound nuclei (CN), thus the fusing system may be pushed into the interior region of CN's saddle point (SP)

against pre-equilibrate separation process as Quasi-fission, and the probability of surmounting the SP, that is to say, the fusion probability becomes larger. But for  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$ , the nucleus  $^{134}\text{Ba}$  would easily dissipate kinetic energy because there are more low-lying energy states to be excited in the early stage of amalgamation, thus more momentum would be needed to go inside the SP as pointed out in ref. [6].

As for the reactions  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$ , there is no such the large deference as observed in the reactions  $^{82}\text{Se}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{82}\text{Se}+^{138}\text{Ba}$ . Both the fusion for  $^{86}\text{Kr}+^{134}\text{Ba}$  and  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  shows a hindrance at their barrier regions. However the fusion probability for the reaction  $^{86}\text{Kr}+^{138}\text{Ba}$  show the anomalous increase at the energy of  $E_{\text{ex}} \leq 14\text{MeV}$ . This could be due to the shell effect.

To investigate the dependence of the fusion reaction on the shell effect, we are continue to measure the ER cross-sections for the reactions  $^{82}\text{Se}+^{140}\text{Ce}$ , where  $^{140}\text{Ce}$  has a closed neutron shell of  $N=82$ .

#### References

- [1] K. Satou, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, K. Nishio, and S. C. Jeong, Phys. Rev. C 65 (2002) 054602.
- [2] W. Reisdorf, and M. Schädel, Z. Phys. A 343 (1992) 47.
- [3] A. B. Quint, W. Reisdorf, K.-H. Schmidt, P. Armbruster, F. P. Hessberger, S. Hofmann, J. Keller, G. Münzenberg, H. Stelzer, H.-G. Clerc, W. Morawek, and C.-C. Sahn, Z. Phys. A 346 (1993) 119.
- [4] K. Nishio, H. Ikezoe, S. Mitsuoka, and J. Lu, Phys. Rev. C 62 (2000) 014602.
- [5] S. Mitsuoka, H. Ikezoe, K. Nishio, and J. Lu, Phys. Rev. C 62 (2000) 054603.
- [6] P. Möller and A. J. Sierk, Nature 422 (2003) 485



### 3.2.8 $^{135}\text{La}$ の同位体シフトのレーザー分光 ISOTOPE SHIFTS OF $^{135}\text{La}$ BY COLLINEAR LASER SPECTROSCOPY

飯村 秀紀、小泉 光夫、宮部 昌文、大場 正規、篠原 伸夫、石田 佳久<sup>A</sup>、  
堀口 隆良<sup>B</sup>、H. A. SCHUESSLER<sup>C</sup>

日本原子力研究所 319-1195 茨城県那珂郡東海村

<sup>A</sup>理化学研究所 351-0106 埼玉県和光市広沢 2-1

<sup>B</sup>広島国際大学 724-0695 広島県黒瀬町学園台 555-36

<sup>C</sup>Texas A&M University 77843 College Station Texas USA

H. IIMURA, M. KOIZUMI, M. MIYABE, M. OBA, N. SHINOHARA, Y. ISHIDA<sup>A</sup>,  
T. HORIGUCHI<sup>B</sup> and H. A. SCHUESSLER<sup>C</sup>

Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195

<sup>A</sup>Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN), Wako, Saitama 351-0106

<sup>B</sup>Hiroshima International University, Kurose-cho, Hiroshima 724-0695

<sup>C</sup>Texas A&M University, College Station, Texas 77843 USA

#### 1. はじめに

コリニアア・レーザー分光は従来の方法に比べて高い精度で準位間のエネルギー差を測定することが出来、また同位体を分離して測定することが可能である。この手法を用いて、La 同位体 ( $Z=57$ ) の超微細構造と同位体シフトの研究を行っている。La 同位体は、中性子数がマジックナンバーである 82 から減るのに従って原子核の形は球形から回転楕円体に急激に遷移し、核構造論上興味深い領域にある。しかしながら、これらの同位体の核電磁気モーメントや平均二乗核荷電半径の変化は、それらが核構造を調べる上で重要な物理量であるにもかかわらず、安定同位体の  $^{139}\text{La}$  を除いて殆どデータが無い。ここでは半減期 19.5 h の  $^{135}\text{La}$  の超微細構造と同位体シフトの測定について報告する。

#### 2. 試料の作成

$^{135}\text{La}$  は天然に存在しない放射性同位体であるので、タンデム加速器の陽子ビームで Ba ターゲットを照射することにより、 $^{137}\text{Ba}(p,3n)$  反応により生成した。Ba ターゲットは、濃縮同位体の炭酸バリウム粉末を用いた。それぞれの試料について、29 MeV の陽子ビームで約 1 日照射することにより、約  $10^{13}$  atoms (2 ng) の  $^{135}\text{La}$  が生成された。照射後 Ba ターゲットより La をイオン交換法により分離し、質量分離装置のイオン源に入れた。

#### 3. 実験方法

実験はアルゴンイオンレーザー (Coherent INNOVA-100-20) 励起の色素レーザー (Coherent 699-29) を用いて行った。レーザーの出力は二分され、一方は周波数較正系、他方は質量分離装置へ導かれる。周波数の較正は、絶対値をヨウ素セルの発光分光により、また相対値をファブリ・ペロ干渉計 (Burleigh CFT-500) により行った。質量分離装置は、表面電離型イオン源を用いており、これは La を含む希土類元素を効率よくイオン化するのに適している。イオン源から引き出されたイオンビームは 40 keV に加速され、電磁石で質量分離された後、共線上で (Collinear) レーザー光を照射された。

共鳴励起されたイオンの蛍光は、楕円ミラーにより光電子増倍管 (Hamamatsu R2256) に集光された。光電子増倍管は暗電流を減少させるため冷却している。またレーザーの散乱光を低減するため、色ガラスフィルターを使用している。レーザーとイオンが反応する領域には、金属製のメッシュの円筒を置き、-3 kV の電圧をかけている。これによって、イオン源で生成された準安定状態にあるイオンが、測定点に来る前にレーザーと反応して無くなってしまふのを防いでいる。レーザー周波数を一定の速度で掃引して、測定点からの蛍光、フ

アブリ・ペロ干渉計の透過光、ヨウ素の蛍光を同時にマルチチャンネルスケーラーで計数し、スペクトルをコンピュータに取り込んだ。

#### 4. 放射性同位体 $^{135}\text{La}$ のレーザー分光

$\text{La}$  イオンの準安定状態  $6s^2\ ^1\text{S}_0$  より  $5d6p\ ^3\text{D}_1$  状態への  $538.2\ \text{nm}$  遷移をレーザーで励起し、基底状態近傍に遷移する蛍光を観測した。Fig. 1 は観測データを足し合わせて得られたスペクトルである。測定された線幅は約  $150\ \text{MHz}$  である。イオンビームの強度は約  $10^7\ \text{ions/s}$  ( $1\ \text{pA}$ ) であった。ここで  $F$  量子数は  $J, I$  をそれぞれ電子系スピン、核スピンとして  $F=J+I$  で表される。 $^{135}\text{La}$  は核スピンの  $5/2$  であるので、3本の超微細成分となる。Fig. 1 に示したように、そのうち2本が観測された。 $F$  量子数の同定は、簡単なモデルで計算されるピークの相対強度と、近傍の原子核の核半径の系統性によっている。 $5/2-7/2$  のピークは観測していないが、Fig. 1 の掃引の範囲より高い周波数に在るはずである。

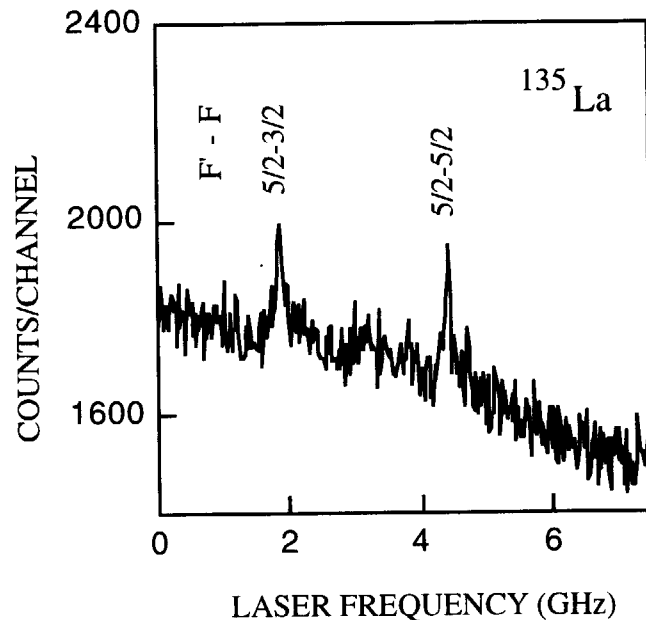


Fig. 1. Summed hyperfine spectrum of the  $538.2\text{-nm}$  transition of  $^{135}\text{La}$ .

#### 5. 同位体シフト

観測されたスペクトルより、 $^3\text{D}_1$  状態の超微細構造定数  $A, B$  の両方を決定することは出来ない。近傍の陽子数が奇数の原子核の  $5/2^+$  状態の電気四重極モーメントより、 $^{135}\text{La}$  の電気四重極モーメントの値を仮定して  $A$  を決定した。この仮定による  $A$  の値の誤差は約  $1\%$  である。 $^{139}\text{La}$  の磁気モーメントの文献値と、今回測定されたこれらの同位体の  $A$  の値より、 $^{135}\text{La}$  の磁気モーメントを  $\mu(^{135})=+3.77(17)\ \mu_N$  と決定した。この値は中性子数の等しい  $^{133}\text{Cs}$  の磁気モーメントと近い値であり、これらの原子核の  $5/2^+$  状態が似た核構造であることを示唆している。次に  $^{135}\text{La}$  と  $^{139}\text{La}$  間のシフトは、同時に測定したヨウ素のスペクトルを基準として決定した。ここで超微細構造スペクトルの重心は超微細構造定数より導いた。得られたシフトは同位体毎に異なるドップラーシフトを含んでいるので、同位体シフトを得るためにはこれを差し引かなくてはならない。その結果、 $538.2\ \text{nm}$  遷移について  $^{135}\text{La}$  と  $^{139}\text{La}$  間の同位体シフトが  $200(110)\ \text{MHz}$  と決定された。同位体シフトから質量シフトを差し引くことにより平均二乗核荷電半径の差を求めることが出来る。この解析の結果、 $\langle r^2 \rangle_{139} - \langle r^2 \rangle_{135} = 0.08\ \text{fm}^2$  と決定された。この値は FRDM [1]、ETFSI [2]、HFBCS [3] などの理論的予測よりも小さい。このようなずれは隣の  $\text{Ba}$  同位体 ( $Z=56$ ) でも報告されている。 $\gamma$  線分光により、この領域では原子核の軸対称性を破る変形が言われている。これらの理論的モデルは軸対称変形を仮定しているため、それからのずれは  $^{135}\text{La}$  が非軸対称変形をしているとして説明できる。

#### References

- [1] P. Moller *et al.*, *At. Data Nucl. Data Tables* **59**, 185(1995).
- [2] Y. Aboussir *et al.*, *At. Data Nucl. Data Tables* **61**, 127(1995).
- [3] S. Goriely *et al.*, *At. Data Nucl. Data Tables* **77**, 311 (2001).



### 3.2.9 質量数 70 近傍の入射核クーロン励起実験

<sup>a</sup>長 明彦、<sup>a</sup>小泉光生、<sup>a</sup>大島真澄、<sup>a</sup>藤 暢輔、<sup>a</sup>木村 敦、  
<sup>a</sup>初川雄一、<sup>a,c</sup>関 暁之、<sup>b</sup>菅原昌彦、<sup>d</sup>草刈英榮、<sup>e</sup>森川恒安  
<sup>a</sup>原研、<sup>b</sup>千葉工大、<sup>c</sup>九州大、<sup>d</sup>千葉大、<sup>e</sup>茨城大

#### Coulomb Excitation Experiments of Nuclei with Mass around 70

<sup>a</sup>A. OSA, <sup>a</sup>M. KOIZUMI, <sup>a</sup>M. OSHIMA, <sup>a</sup>Y. TOH, <sup>a</sup>A. KIMURA,  
<sup>a</sup>Y. HATSUKAWA, <sup>a,c</sup>A. SEKI, <sup>b</sup>M. SUGAWARA, <sup>c</sup>T. MORIKAWA, <sup>d</sup>H. KUSAKARI,  
<sup>a</sup>JAERI, <sup>b</sup>Chiba Inst. of Tech., <sup>c</sup>Kyushu Univ., <sup>d</sup>Chiba Univ., <sup>e</sup>Ibaraki Univ.

#### 1. はじめに

質量数 70 近傍の安定な原子核は、中性子数が魔法数 28 と 50 の間にあり、中性子数が 38 のサブシェルより大きくなると変形度が大きくなることが励起エネルギーや換算遷移確率  $B(E2)$  などから指摘されてきた。この領域ではまた、3 軸非対称変形や、変形共存の存在についても指摘されており、核構造を包括的に理解するためには、これら原子核の Q モーメントや、系統的な  $B(E2)$  などの換算遷移確率が必要である。我々は、70-80 の安定な原子核のクーロン励起実験を系統的に行ってきたおり、これまでに Ge 原子核で球形とプロレイト変形の変形共存を明らかにし、また基底状態の変形が、 $N=40$  で変化することを明らかにした。また、近傍の他の原子核についても  $B(E2)$  や Q モーメントを決定してきた。本稿では、原研タンデム加速器施設で行っているクーロン励起実験について報告する。

#### 2. 実験および解析

クーロン励起実験は、Q モーメントや  $B(E2)$  を測定する有効な測定法であるが、質量数 70 近傍の原子核は第 1 励起準位 ( $E(2_1^+)$ ) が約 1MeV と高く、クーロン励起の確率が低いため、これまで Q モーメントは測定されてこなかった。我々は、これらの原子核のクーロン励起実

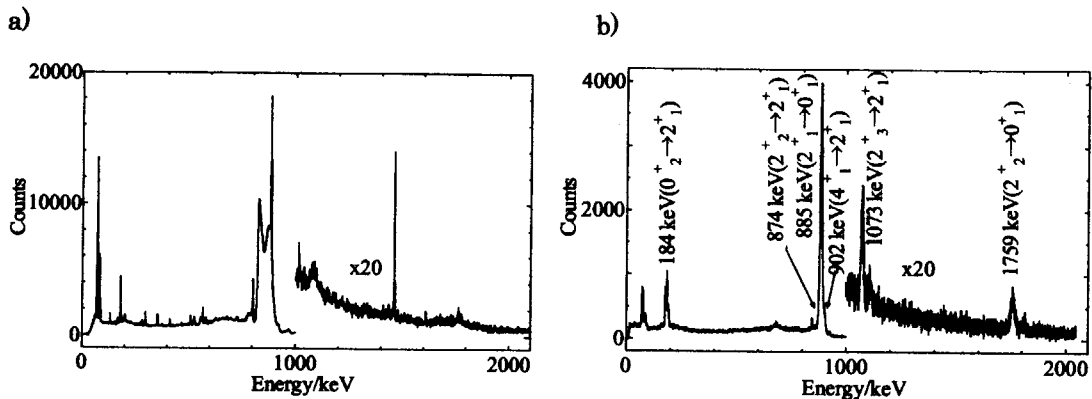


図1 クーロン励起実験で得られたスペクトルの例。<sup>70</sup>Zn ビームを <sup>nat</sup>Pb ターゲットに照射した。(a) 実験で得られたスペクトル。(b) 粒子検出器の検出位置でドップラー補正を行ったもの。

験を高感度に行うために、位置感応型散乱粒子検出器”LUNA” [1]の開発を行い、これを多重ガンマ線測定装置”GEMINI” [2]に組み込んだ。また、従来のクーロン励起実験とは逆に、重イオンビームをクーロン励起するため、これまで実験が困難であった存在率の少ない同位体や希ガスのクーロン励起が可能となった。(このように様々な原子核のクーロン励起実験が行えるようになったのは、タンデム加速器施設のビーム開発に依るところが大きい。)

粒子検出器 LUNA は、小型の位置感応型光電子増倍管 (28 mm×28 mm×厚さ 20 mm) に薄いシンチレーター (厚さ約 1 mm) を貼り付けたもの 4 個で構成されている。GEMINI は、BGO アンチコンプトン Ge 検出器 12 台を、ターゲットを取り囲むよう球状に配置したものである。入射した重イオンビームはターゲットで散乱され、同時にクーロン励起される。実験では、励起された原子核より放出されるガンマ線と散乱粒子を同時に計測する。検出器からの信号は、NIM 回路で信号処理され、CAMAC でイベント毎にデータ収集される。CAMAC は VMS オンボードコンピュータに制御されており、データは、TCP/IP ネットワーク経由で Free-BSD コンピュータのテープ装置に記録される。図 1 にクーロン励起で得られたスペクトルの例を示す。反跳粒子の検出器の位置よりドップラー補正を行った結果、<sup>70</sup>Zn の 6 本のガンマ線ピークが確認できた。

解析には、粒子の反跳角に対するガンマ線強度を入力データとし、クーロン励起実験解析プログラム GOSIA を用いた。GOSIA は、入射粒子の反跳角に対するクーロン励起確率と、準位の寿命や遷移の分岐比などの核データを最もよく再現するように、換算遷移確率や Q モーメントなどを最小自乗法で求めるプログラムである。

### 3. 実験結果

質量数 70 近傍の安定な偶偶核を図 2 の核図表に示す。原研でクーロン励起実験を行った原子核を灰色で示した。これらの原子核の Q モーメントや、換算遷移確率を求めてきた。特に Q モーメントは、原子核の変形度を議論するための重要な物理量である。図 2 では、 $2_1^+$  の Q モーメントのみを示す。<sup>64,68,70</sup>Zn については解析が進行中である。

						<sup>36</sup> Kr		78	80	82	84	86
						74	76	78	80	82	84	
						34Se						
						70	72	74	76	78		
						0.04 (3)	-0.12 (8)	-0.19 (2)	-0.14 (4)			
		<sup>30</sup> Zn		64	66	68	70					
					0.24 (15)							
<sup>28</sup> Ni	58	60	62	64	(1)							
	-0.14 (10)	0.01 (10)	0.37 (20)	0.35 (20)	(2)							
	-0.10 (6)	0.03 (5)	0.05 (12)									
N	30	32	34	36	38	40	42	44	46	48	50	

図 2 質量数 70 近傍の  $2_1^+$  の Q モーメント (単位: eb)。原研でクーロン励起実験を行った原子核を灰色で示した。Ni 原子核の Q モーメントは、以下の参考文献の値を併記した。

- (1) J. Charbonneau et al., Bull. Amer. Phys. Soc. 16 (1971) 625.
- (2) Tanle of isotopes (1998).

安定な Ge 原子核に関しては、 $^{70,74,76}\text{Ge}$  のクーロン励起実験を行った[3-5]。実験では、 $^{70}\text{Ge}$ 、 $^{74}\text{Ge}$ 、 $^{76}\text{Ge}$  を 296-300MeV に加速し  $^{208}\text{Pb}$  ターゲット(約  $1.7\text{mg/cm}^2$ ) に照射した。Ge 偶々核の低励起準位はその励起エネルギーから、 $^{72}\text{Ge}$  の特異な  $0_2^+$  を除いて、典型的なパイブレーション的な構造をしている様に見える。しかし、多重クーロン励起の結果から Ge の低励起準位はパイブレーションよりむしろバンドとして理解されることが明らかになった。このことにより  $^{72,74,76}\text{Ge}$  においては  $2_2^+$  は  $\gamma$  バンドヘッドであり、 $0_2^+$  は球形のイントルーダー準位として解釈できることがわかった。 $^{70}\text{Ge}$  においては、これとは逆に基底バンドが球形で  $0_2^+$  が変形していることがわかった。このことは基底準位の  $0_1^+$  と励起準位の  $0_2^+$  が  $^{70}\text{Ge}$  と  $^{72}\text{Ge}$  の間で逆転していることを示している。

#### 4. まとめと今後の展望

我々は、クーロン励起実験を行ってきており、Ge 原子核では変形共存や、中性子数によるバンドの逆転現象を明らかにしてきた。また、紙面の都合上割愛したが、 $^{84}\text{Kr}$ [6]、 $^{78}\text{Se}$ 、 $^{66}\text{Zn}$ 、では新たに Q モーメントを得た。他の Zn 原子核に関しては現在解析が進行中である。質量数 100 近傍の原子核もイントルーダー準位など興味深い問題があり、この領域についても実験を開始している。 $^{98}\text{Mo}$  に関しては、すでに論文となっている[7]。

クーロン励起実験をより高感度に行うために、GEMINI の改造を行い検出器の数を増やした。改造は 2002 年 11 月に完了し、GEMINI-II となった。GEMINI-II は BGO サプレッサー付き Ge 検出器 16 台+低エネルギー Ge 検出器 3 台が装着できる。LUNA に関しては、粒子検出器 6 台を立方体状に配置できるように改造した。クーロン励起実験に関しては、GEMINI-II への増加と合わせて、データ収集レートが約 2 倍程度向上すると期待している。現在は、データ収集系の能力を向上させるための開発を行っている。今後は、更新された多重ガンマ線検出装置 GEMINI-II で質量数 100 近傍の原子核についての研究を進めていく予定である。安定核においても Q モーメント、B(E2)などが測定されていない核種は多く、精密核構造理論の構築には電磁気物理量の情報は欠かせない。

将来的には、これまでの経験をふまえ、短寿命核加速器施設で加速される短寿命核の入射核クーロン励起実験に特化した装置を開発し、不安定核の Q モーメントを測定することを計画している。アイソマーをのぞき、励起状態の Q モーメントを測定する手段は現在のところクーロン励起が最も有望で、不安定核の構造研究に重要な手段を提供すると期待される。

#### References

- [1] Y. Toh et al., Review of Scientific Instruments 73 (2002) 47-50.
- [2] K. Furuno et al., Nucl. Instrum. and Meth. A421 (1999) 211-226.
- [3] Y. Toh et al., Eur. Phys. J. A 9 (2000) 353.
- [4] Y. Toh et al., J. Phys. G27 (2001)1475.
- [5] M.Sugawara et al., Eur. Phys. J. A 16 (2003) 409.
- [6] A. Osa et al., Phys. Letters B 546 (2002) 48-54.
- [7] M. Zielinska, et al., Nucl. Phys. A712 (2002) 3; Acta Physica Polonica B33 (2002) 515.





### 3.2.10 Na 同位体の磁気モーメントによる $N = 20$ 魔法数の消滅

## Disappearance of the $N = 20$ magic number studied by electromagnetic moments of Na isotopes

宇都野穰<sup>1</sup>、大塚孝治<sup>2,3</sup>、水崎高浩<sup>4</sup>、本間道雄<sup>5</sup>  
 Y. UTSUNO<sup>1</sup>, T. OTSUKA<sup>2,3</sup>, T. MIZUSAKI<sup>4</sup>, and M. HONMA<sup>5</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究所物質科学研究部

Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute

<sup>2</sup> 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻

Department of Physics, University of Tokyo

<sup>3</sup> 理化学研究所

The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

<sup>4</sup> 専修大学自然科学研究所

Institute of Natural Sciences, Senshu University

<sup>5</sup> 会津大学総合数理科学センター

Center for Mathematical Sciences, University of Aizu

#### 概要

中性子過剰 Na 同位体の基底状態における電磁モーメントをモンテカルロ殻模型による大規模殻模型により計算し、近年行われた実験値と比較した。その結果、中性子過剰核でよく知られている  $N = 20$  魔法数の消滅は、 $N \geq 20$  核のみで見られるという従来考えられていた見方は正しくなく、 $^{30}\text{Na}$  のような  $N = 19$  核でも起こることが分かった。これは理論的には  $N = 20$  のシェルギャップエネルギーが中性子過剰核ではこれまで考えられていたよりもかなり狭いことを意味し、動的なシェルギャップの変化が魔法数消滅の主要なメカニズムを担っていることを示している。

## 1 研究の背景

近年、中性子過剰核に代表される不安定核の構造、反応研究が世界各地で進展しており、不安定核特有の物理現象について様々な知見が得られてきている。 $N = 20$  魔法数の消滅はその中で現在精力的に研究されているトピックスの一つである。一般に安定核では  $N(Z) = 2, 8, 20, 28, 50, 82, 126, \dots$  の魔法数は安定して存在し [1]、これらの周りの核では魔法構造を反映して球形の基底状態をもつことが知られている。しかし、中性子過剰 Na の質量測定 [2] により  $^{31,32}\text{Na}$  の束縛エネルギーが理論計算のものよりも明らかに大きいことが指摘されてから、中性子過剰な Na 同位体では何か特異な構造をもつと分かってきた。その最も有力な説明は、中性子過剰核では魔法数を特徴付ける  $N = 20$  の球形構造よりもそれを破った状態の方が変形によるエネルギーの効果でエネルギーが下がるというもの [3]。その後、Mg 同位体の第一励起状態  $2_1^+$  の励起エネルギー [4] の系統性と  $^{32}\text{Mg}$  における非常に大きな  $B(E2; 0_1^+ \rightarrow 2_1^+)$  の値 [5] から、Mg でも基底状態が大きく変形しうることがわかり、いわゆる魔法構造の消滅という現象の存在が明らかになってきた。

このような魔法構造消滅がなぜ中性子過剰核では起こりうるのかというメカニズムについては、これまでのところ変形による相関エネルギーが Na, Mg で特に大きくなるという説明が有力であった。例えば、魔法構造を保つ 0 粒子 0 空孔 ( $0p0h$ ) 状態と魔法構造を破った 2 粒子 2 空孔 ( $2p2h$ ) 状態のエネルギーを殻模型計算によって比較した、“island of inversion” 描像 [6] では、魔法数消滅の原因をその立場から論じており、実際その模型で  $^{32}\text{Mg}$  の変形をかなりの程度まで説明している。

最近、実験で測定される物理量の質量双方の拡大に伴い、限られた核種及び状態だけでなく、より広範な実験値が入手できる状況となっている。理論では、これらの全てを一つの枠組みで説明できることが望ましいが、そのためにはまず計算が十分精密で信頼できるものであることが大前提である。原子核構造における殻模型は核構造で重要な相関をよく取り込んでいるため、核の低励起状態の構造研究に非常に適しているが、極めて巨大次元の行列を対角化しなければならないので、適用できる核は限られていた。近年モンテカルロ殻模型 (MCSM)[7] と呼ばれる手法の発展により、このような計算による制約もかなりの程度緩和され、詳しい核構造がより多くの核で計算できるようになっている。本研究では、MCSMにより典型的な魔法構造消滅核である Na 同位体の基底状態の電磁モーメントを計算し、魔法構造消滅のメカニズムを理解することを目的としている。なお、この計算の一部に原研タンデムに設置された並列計算機 Helios を用いた。

## 2 結果と議論

計算に用いた有効相互作用は以前イラスト状態を計算した時のもの [8] と全く同じものである。ここでは [8]、O 同位体の束縛エネルギーを説明するためには有効相互作用の単極相互作用を適切にする必要が指摘されている。その結果、 $N = 20$  のシェルギャップは常に一定ではなく、陽子数が小さいときは狭くなっている。例えば、同じ  $N = 20$  核でも  $^{31}\text{Na}$  ではシェルギャップが 3.5MeV 程度しかないのに対し、 $^{40}\text{Ca}$  では約 6MeV である。

この特徴を持つ殻模型ハミルトニアンにより、Na 同位体の電氣的四重極モーメント及び磁気双極子モーメントを計算した結果を示したのが図 1 である。実験値の電磁モーメントは、 $N = 18$  までは魔法数の安定な存在を仮定した *sd* 殻模型でよく再現されるが、 $N = 19, 20$  核では全く合わない。一方、魔法数消滅の可能性を模型に組み込んである MCSM 計算ではすべての電磁モーメントをよく再現している。MCSM 計算で得られた  $^{30}\text{Na}(N = 19)$  の基底状態を解析すると、魔法構造を破った  $2p2h$  状態がその 90% 以上を占めることがわかり、 $N = 19$  で既に魔法数の消滅が起きていることが示される。これは従来の理論計算では指摘されてこなかった新しい点である。

次に、魔法数消滅のメカニズムを理解するため、この研究に用いた有効相互作用の単極相互作用を変化させることによりシェルギャップがこれよりも広いものを作り、それにより一連の電磁モーメントを計算した。その結果、 $^{30}\text{Na}$  ではおよそ 4MeV を超えたあたりで基底状態が  $0p0h$  が急に支配的になり、実験値の電磁モーメントと大きくずれてしまうことがわかった。この時、 $^{31}\text{Na}$  では依然として実験値に近い電磁モーメントを与えている。つまり、 $^{30}\text{Na}$  は模型のシェルギャップを基底状態の構造に最も敏感に反映する核であり、この結果から不安定核では安定核よりもかなり狭いシェルギャップでなければならないことが導かれる。不安定核でこのような特異な性質が現れる原因は相互作用のスピン-アイソスピン依存性から一般的に説明される [10]。

## 3 まとめ

Na 同位体の電磁モーメントはその基底状態の構造をよく反映しており、 $N = 20$  領域で知られる魔法数消滅について多大な情報を与えるものである。最近の実験値と MCSM による大規模殻模型計算を比較することにより、Na では  $N = 19$  核で既に魔法数が消滅することがわかった。この結果から有効一粒子エネルギーで定義される  $N = 20$  シェルギャップは安定核で信じられてきたものよりもずっと狭くなくてはならないことが示され、核構造の模型に大きな制約を与えている。この陽子数による動的なシェル構造の変化は不安定核構造の物理を普遍的に支配する可能性があり、今後有効相互作用の観点及び緩く束縛された一粒子軌道など様々な立場から検証する必要があるが、最近提案されたスピン-アイソスピン依存した有効相互作用による説明 [10] はその有力な一つである。

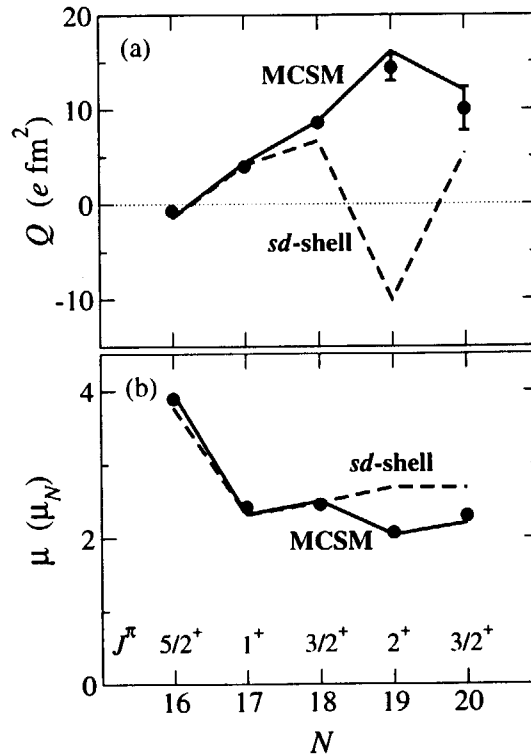


図 1: Na 同位体の (a) 電気的三重極モーメントと (b) 磁気二極子モーメント を実験と殻模型計算で比較したもの。実線 (MCSM) は MCSM 計算、破線 ( $sd$ -shell) は  $sd$  殻計算を表す。実験値は Keim ら [9] による。

## 参考文献

- [1] 例えば、A. Bohr and B.R. Mottelson, *Nuclear Structure*, Vol. 1 (Benjamin, New York, 1969).
- [2] C. Thibault *et al.*, *Phys. Rev. C* **12**, 644 (1975).
- [3] X. Campi, H. Flocard, A. K. Kerman, and S. Koonin, *Nucl. Phys.* **A251**, 193 (1975).
- [4] D. Guillemaud-Mueller *et al.*, *Nucl. Phys.* **A426**, 37 (1984).
- [5] T. Motobayashi *et al.*, *Phys. Lett. B* **346**, 9 (1995).
- [6] E.K. Warburton, J.A. Becker, and B.A. Brown, *Phys. Rev. C* **41**, 1147 (1990).
- [7] T. Otsuka, M. Honma, T. Mizusaki, N. Shimizu, and Y. Utsuno, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **47**, 319 (2001).
- [8] Y. Utsuno, T. Otsuka, T. Mizusaki, and M. Honma, *Phys. Rev. C* **60**, 054315 (1999).
- [9] M. Keim, in *Proceedings of ENAM 98*, edited by B.M. Sherril *et al.*, AIP Conf. Proc. No. 455, p. 50; M. Keim *et al.*, *Euro. Phys. J. A* **8**, 31 (2000).
- [10] T. Otsuka, R. Fujimoto, Y. Utsuno, B.A. Brown, M. Honma, and T. Mizusaki, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 082502 (2001).



### 3.2.11 Ge 領域核の変形共存の理解 An understanding of deformation coexistence of Ge

関暁之<sup>1,2</sup>、Guo Lu<sup>2</sup>、坂田文彦<sup>2</sup>、藤暢輔<sup>1</sup>、大島真澄<sup>1</sup>  
A. SEKI<sup>1,2</sup>、G. LU<sup>2</sup>、F. SAKATA<sup>2</sup>、Y. TOH<sup>1</sup>、M. OSHIMA<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究所物質科学研究部  
Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute  
<sup>2</sup> 茨城大学大学院理工学研究科  
Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University

#### 1. はじめに

我々は、日本原子力研究所タンデム加速器多重 $\gamma$ 線検出装置 GEMINI において、Ge 偶々核を用いたビームを  $^{98}\text{Mo}$  ターゲットに照射することにより多重クーロン励起を観測し、そこから  $B(E2)$ 、 $\langle Q^2 \rangle$ 、 $\langle \cos(3\delta) \rangle$  などを観測した。それにより  $^{70}\text{Ge}$  においては  $0_1^+$  が球形、 $0_1^+$  が変形を示す結果を得た。また  $^{74}\text{Ge}$ 、 $^{76}\text{Ge}$  においては、B. Kotlinski らによって得られた  $^{72}\text{Ge}$  の結果と同様に  $0_1^+$  が変形  $0_2^+$  が球形を示す結果を得た。つまり  $0_1^+$  と  $0_2^+$  の示す原子核の形状が  $^{70}\text{Ge}$  と  $^{72}\text{Ge}$  の間で逆転していることがわかった。それら原子核の形状は、その内部構造に強く依存していると考えられる。そこで今回はこれまでに得られた Ge の観測結果と、Nilsson-Strutinsky (NS) モデル、CHF モデルから得られた理論計算の結果との比較をする。その比較からなぜそのような  $^{70}\text{Ge}$  と  $^{72}\text{Ge}$  間の形状の逆転が発生するのかを微視的な理論より考察してみた。

#### 2. Nilsson-Strutinsky モデル

質量数 70 から 76 までの Ge の偶々核を対象にクーロン励起実験を行いそこから低い励起準位を観測した。その励起準位からその原子核の変形を示す物理量を得られた。得られた物理量である  $\langle Q^2 \rangle$  は原子核の形状が回転楕円体となる度合を示し、 $\gamma$  はその楕円体の回転対称軸から 3 軸非対称方向へのズレを示している。実際にこれらの物理量を用いて観測した質量数 70 から 76 の Ge の励起準位から予測すると原子核形状におけるある系統性の変化がみられた。 $\langle Q^2 \rangle$  に着目すると各原子核の  $0_1^+$  と  $0_2^+$  の系統性が  $^{70}\text{Ge}$  と  $^{72}\text{Ge}$  で逆転していることがわかる。これと同じ領域を理論計算より考えていく。まず NS モデルを用いて検証していく。変形パラメータ  $\beta$  と  $\langle Q^2 \rangle$ 、 $\gamma$  と  $\langle \cos(3\delta) \rangle$  の各関係式は

$$\beta_{rms} = \frac{4\pi}{3ZR_0^2} \sqrt{\langle Q^2 \rangle}, \quad \gamma = \frac{1}{3} \arccos(\langle \cos 3\delta \rangle)$$

となる。NS モデルから得られたポテンシャル面が図 1 において示される。各等高線の間隔は 250keV を表す。 $^{70}\text{Ge}$  と  $^{72}\text{Ge}$  においてはあまり良い一致を示していないが、 $^{74}\text{Ge}$  と  $^{76}\text{Ge}$  においては近い傾向を示していると言える。またエネルギー準位の性質では  $^{72}\text{Ge}$  において準位が下がってくる傾向が再現された。

これまで検証してきた結果から NS モデルの計算と実験値はまだかなりの違いがあらわれている。この原因は NS モデルが調和振動子ポテンシャルをもとに原子核の変形を再現しているからと考えられる。そこで次にポテンシャルが自己無撞着に決められる CHF 計算から Ge 領域の原子核の形状を検証してみる。

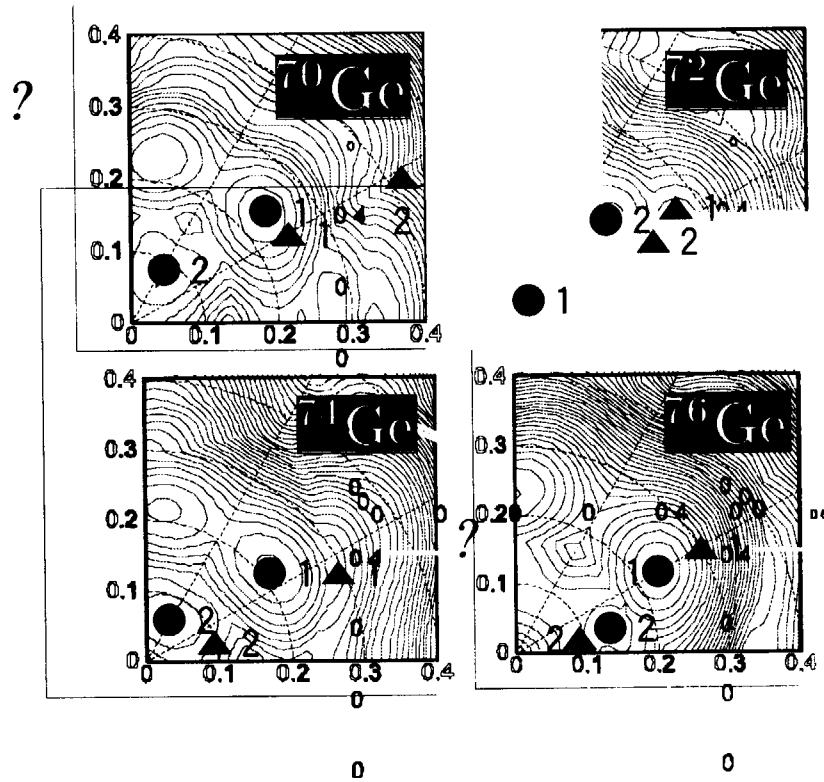


図1 Nilsson-Strutinsky モデルで計算されたポテンシャル面と実験値の比較。●が計算値で▲が実験値を示す。1は基底状態、2は第二極小点を示す。

### 3. CHF モデル

CHF 計算は

$$E = \langle H \rangle + \frac{1}{2} C \langle \hat{Q} \rangle - \mu$$

の方程式を解くことにより求められる。ここである変形度  $Q$  における収束解を得るために  $\mu$  を固定している。この方程式に従い、指定した  $\mu$  で収束解をもとめようとするとき求められない  $\mu$  の点が見付かる。ここで CHF 計算では与えた  $\mu$  に対し断続的な  $Q$  の値が得られてしまう。この  $Q$  に対しポテンシャル面は連続的に求めることができない。このときの single-particle エネルギーをみていく。基底状態のある  $Q \approx 300$  を基準にそこで粒子に占有されている軌道と、占有されていない軌道に着目する。ポテンシャル面の  $Q \approx 0$  近傍で基底状態において非占有だった軌道が占有されている状態になる。ポテンシャル面の  $Q \approx 800$  近傍でも非占有だった軌道が占有されている状態になる。つまり  $Q$  の断続的な部分で配位の入れ換えがあることを示している。この配位の入れ換えを許可して低いポテンシャルを得ようとするとき  $Q$  の大きな変化が見られることがわかる。このような  $Q$  の断続的な結果は NS 計算では得られない。NS では常に非断熱的な仮定があり、ポテンシャル面は連続的に続くからである。しかし CHF 計算では非断熱的な仮定において  $Q$  に対するポテンシャル面を連続に表現することができない。各  $Q$  の値に対しポテンシャル面を得るために配位を固定した断熱的な CHF 計算が必要と考えられる。配位を固定する条件は

$$\left| \langle \phi_i^{RS} | \phi_i \rangle \right| \geq 0.9 \quad i, i': \text{占有軌道}$$

とする。隣接する  $\mu$  の値に対し以上の条件が満たされた軌道へ常に粒子を詰めていくように

していく。この条件を入れた CHF 計算の結果と実験値を比較した図が図2のようになる。このように断熱的な CHF 計算を行うことにより、連続な Q に対しポテンシャル面を導くことができた。また NS モデルより現実的な原子核変形、励起状態の結果を得ることができた。

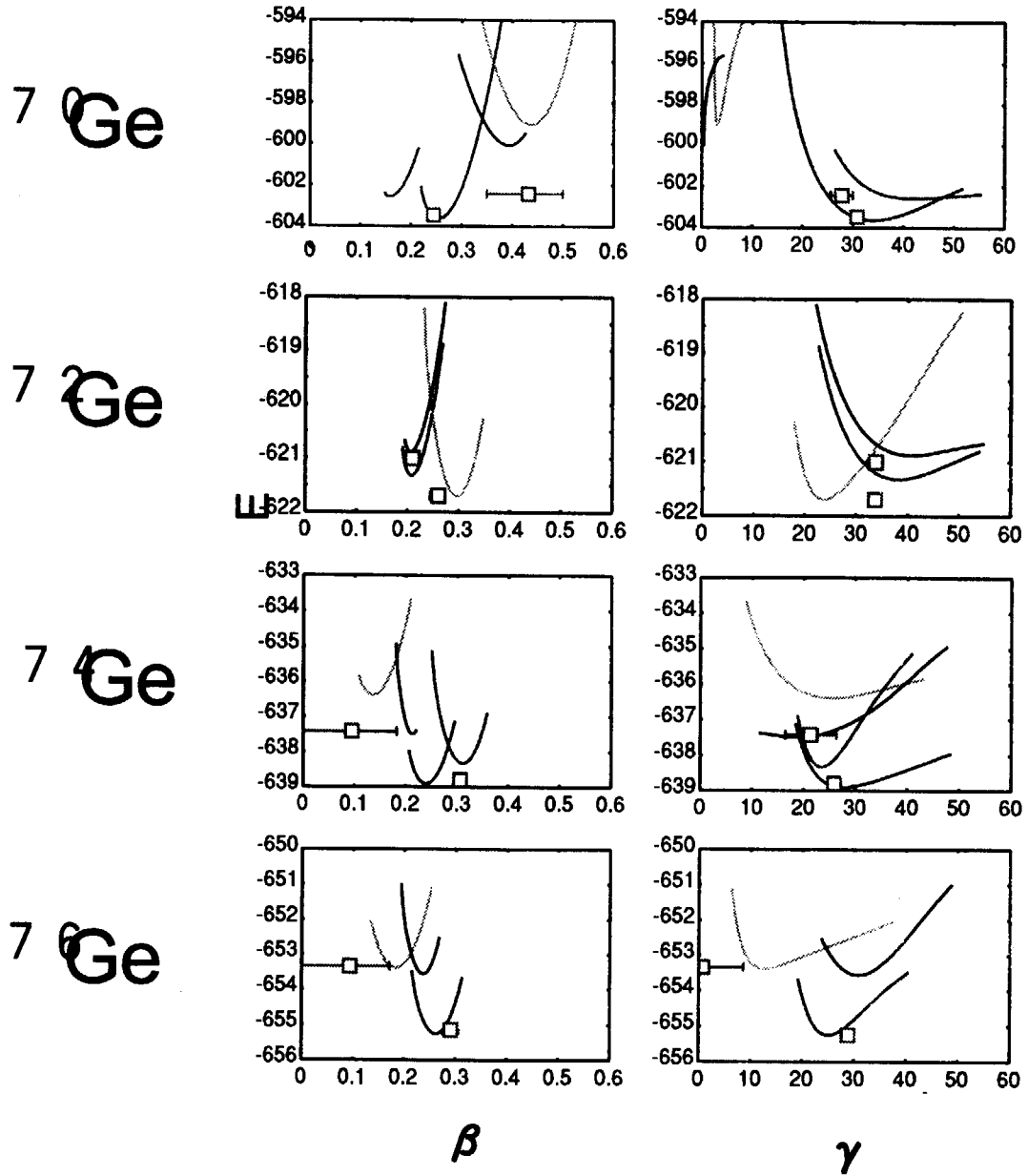


図2 CHF 計算と実験値との比較。□は実験から得られた値。各曲線は配位を変換することにより得られるポテンシャル面を示す。

#### 4. まとめと今後の課題

CHF 計算における各 Q の値において、収束する解を得て局所的なポテンシャルの最小値を得ることができた。つまり断熱的な仮定を用いると、各 Q の値に対して局所的なポテンシャル最小値を得ることが難しい。今後の課題としてはさらに対相関の効果を含めてより現実的な原子核を再現したい。



### 3.3 核化学関連

#### 3.3.1 アクチノイド元素を内包した金属フラーレンの HPLC 溶離挙動に関する研究

#### HPLC ELUTION BEHAVIOR OF METALLOFULLERENES ENCAPSULATING ACTINIDE ELEMENTS

秋山和彦<sup>1</sup>、末木啓介<sup>2</sup>、塚田和明<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1,4</sup>、西中一朗<sup>1</sup>、  
市川進一<sup>1</sup>、菊地耕一<sup>5</sup>、永目諭一郎<sup>1</sup>、片田元己<sup>5</sup>、中原弘道<sup>5</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究所 先端基礎研究センター、<sup>2</sup>筑波大学 化学系、

<sup>3</sup>理化学研究所 加速器基盤研究部、<sup>4</sup>大阪大学大学院 理学研究科、

<sup>5</sup>東京都立大学大学院 理学研究科

K. AKIYAMA<sup>1</sup>, K. SUEKI<sup>2</sup>, K. TSUKADA<sup>1</sup>, H. HABA<sup>3</sup>, M. ASAI<sup>1</sup>, A. TOYOSHIMA<sup>1,4</sup>,  
I. NISHINAKA<sup>1</sup>, S. ICHIKAWA<sup>1</sup>, K. KIKUCHI<sup>5</sup>, Y. NAGAME<sup>1</sup>, M. KATADA<sup>5</sup>,  
and H. NAKAHARA<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute, <sup>2</sup>Department of  
Chemistry, University of Tsukuba,

<sup>3</sup>Cyclotron Center, Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN),

<sup>4</sup>Graduate School of Science, Osaka University,

<sup>5</sup>Graduate School of Science, Tokyo Metropolitan University

#### 1. はじめに

金属内包フラーレンはフラーレン炭素籠内に金属原子を内包している包接化合物の一種である。金属原子を包み込んでいるフラーレンの炭素骨格は全て  $sp^2$  炭素より構成されているため、フラーレン内部の空間は非常に還元的な雰囲気となる。したがって、内包されている金属原子の状態は通常の大気下などで見られるものとは大きく異なると予想される。事実、ランタノイド元素の Sm、Eu、Tm、Yb は大気下では 3 価の酸化状態が安定であるが、フラーレン内部では 2 価であることが知られている[1-3]。現在、金属フラーレンの生成が報告されている元素は周期表第 2 族の Ca、Sr、Ba、第 3 族の Sc、Y、ランタノイド元素、第 4 族の Hf だけであり、アクチノイド元素や、その他の金属元素に関する報告はまだなされていない。また、アクチノイド元素はランタノイド元素と同様に周期表上では f ブロック元素として分類されているが、Th ~ Pu までの軽アクチノイド元素ではその化学的性質がランタノイド元素よりもむしろ遷移金属元素である Hf、Ta、W 等と類似していることがよく知られている。このように一風変わった化学的性質をもつアクチノイド元素が非常に特殊なフラーレン内部という空間で示す性質を調べることは、無機化学的にも、また、フラーレンの科学という立場からも非常に興味深いことである。そこで、Ac から Am までの内包フラーレンを、放射性トレーサーを用いて作成し、大気下で安定なアクチノイド内包フラーレンが示す高速液体クロマトグラフ (HPLC) 溶離挙動からこれらの内包アクチノイド原子の酸化状態などに関する化学的性質を調べた。

#### 2. 実験

金属フラーレンを含むススはアクチノイドトレーサーのエタノール溶液を  $La(NO_3)_3$  をキャリアとともに多孔質炭素に吸収させ、焼結した後、これを放電用陽極とした He 雰囲気下でのアーク放電により作成した。生成したススから  $CS_2$  を用いて金属フラーレン成分を抽出し、これをフラーレン分取用カラムである Buckyprep、5PBB にトルエンを展開液として、Pu については 5PBB カラムに  $CS_2$  を展開液として HPLC 展開を行い、これらカラムにおける溶離挙動を調べた。

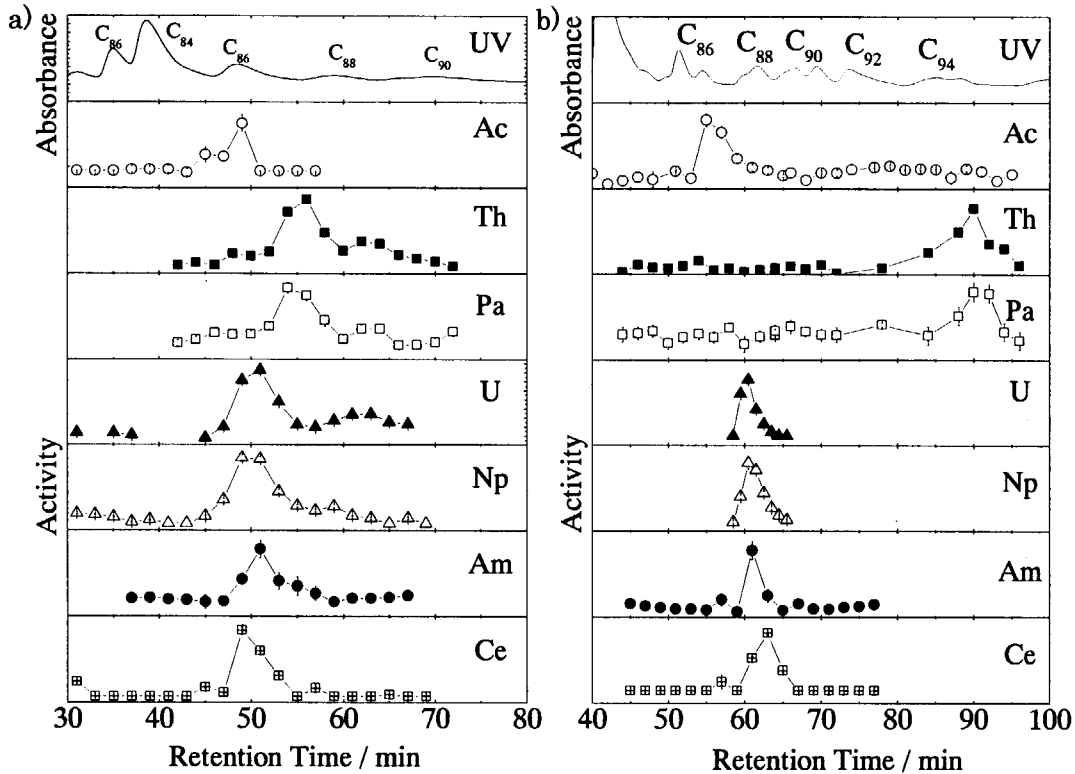


図 1. アクチノイドフラーレンの HPLC 溶離挙動: a)5PBB カラム展開における HPLC 溶離挙動、b)Buckyprep カラムにおける HPLC 溶離挙動

### 3. 結果及び考察

金属フラーレン成分を Buckyprep、5PBB 両カラムに HPLC 展開した結果を図 1a、1b に示す。図中には Ac、Th、Pa、U、Np、Am フラーレンの溶離挙動に加えて、比較のため Ce フラーレンおよび、UV 吸収をモニタした HPLC 溶離挙動を示してある。5PBB カラム展開 (図 1a) において Ac、U、Np、Am フラーレンの溶離挙動は Ce フラーレンの溶離挙動と非常に類似していることが分かる[3]。5PBB カラム展開においてはフラーレン分子上の $\pi$ 電子数と保持時間との間に非常に良い相関があることが知られている[4]。この Ce フラーレンの主溶出ピークはこれまでの研究から  $Ce@C_{82}$  であることが分かっている。したがって、Ac、U、Np、Am フラーレンの保持時間から Ce 同様、 $M@C_{82}$  タイプ (M は金属を示す) の金属フラーレンである可能性が高い。一方、Th、Pa フラーレンの主生成物はその保持時間から U などに比べより大きな炭素ケージを持ったものであるか、内包されている金属原子の価数が大きいことによりフラーレン分子上の $\pi$ 電子数が増加したものと予想される。そこで大量合成を行った Th、U フラーレンの溶出成分をそれぞれ分取して質量スペクトル測定を行ったところ、これらの主溶出成分は U フラーレンについては  $U@C_{82}$  であり、Th フラーレンについては  $Th@C_{84}$  であった。このことから、Ac、U、Np、Am のフラーレン内部における酸化数は+3、Th、Pa の酸化数は+4 であると推測される。また、HPLC 溶離挙動の類似性から、Pa は  $Pa@C_{84}$ 、Ac、Np、Am はそれぞれ  $Ac@C_{82}$ 、 $Np@C_{82}$ 、 $Am@C_{82}$  が主生成物であると考えられる。U、Np、Am については Buckyprep 展開においてもやはり Ce と同様の HPLC 溶離挙動を示すのに対して、Ac はこれらに比べ 5 分ほど早く溶出している。Buckyprep カラム展開において



はフラーレン分子上の $\pi$ 電子数と保持時間の相関に加え、極性的な相互作用の大きさも保持時間に影響を与える。Ac フラーレン保持時間の Ce フラーレン保持時間からのずれは、これらが同数の $\pi$ 電子数を持つことから極性の大きさの違いに起因するものと理解できる。実際、同数の $\pi$ 電子を持ったランタノイド  $M@C_{82}$  の場合においても、La、Ce などに比べ Gd や Tb の金属フラーレンは 5 分程度溶出が遅いことが知られている[5]。

図2は Pu フラーレンの  $CS_2$  を展開溶媒として用いた 5PBB カラム展開の結果である。図中には比較のため Ce、Eu、Np 及び、UV 吸収をモニタした HPLC 溶離挙動も示してある。Pu フラーレンの溶出ピークはトルエン展開のときと同様 Ce や Np とほぼ等しい保持時間を持っており、Eu フラーレンとは異なっている。この結果は Pu が Ce や Np と同様  $M@C_{82}$  タイプの金属フラーレンであることを示唆している。

上記の結果をまとめると、Ac、U、Np、Pu、Am の金属フラーレンは内包金属原子の酸化数が+3 の  $M@C_{82}$  であり、Th、Pa は内包金属原子の酸化数が+4 の  $M@C_{84}$  フラーレンであると考えられる。

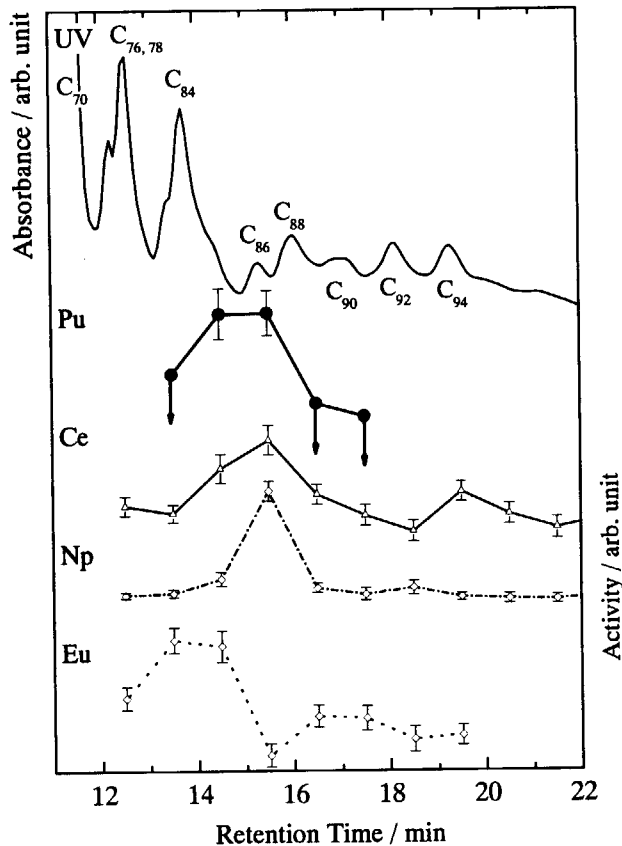


図2. Pu フラーレンの HPLC 溶離挙動：矢印のついた黒丸は Pu の検出限界値である。

## Reference

1. U. Kirbach, and L. Dunsch, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **35**, 2380 (1996).
2. T. Pichler, M.S. Golden, M. Knupfer, J. Fink, U. Kirbach, P. Kuran, and L. Dunsch, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3026 (1997).
3. K. Sueki, K. Akiyama, T. Yamauchi, W. Sato, K. Kikuchi, S. Suzuki, M. Katada, Y. Achiba, H. Nakahara, T. Akasaka, K. Tomura, *Fullerene Sci. Technol.* **5**, 1435 (1997).
4. S. Ohkubo, T. Kato, M. Inakuma, and H. Shinohara, *New Diamond and Frontier Carbon Technol.* **11**, 285 (2001).
5. D. Fuchs, R. Hermann, R. H. Michel, A. Fischer, P. Weis, and M. M. Kappes, *J. Phys. Chem.* **100**, 725 (1996).



### 3.3.2 非対称核分裂モードにおける球形殻効果の励起エネルギー変化 EXCITATION ENERGY DEPENDENCE OF SHELL EFFECTS IN ASYMMETRIC FISSION MODE

西中一朗<sup>1</sup>, 谷川勝至<sup>2</sup>, 後藤真一<sup>3</sup>, 永目諭一郎<sup>1</sup>, 西尾勝久<sup>1</sup>,  
横山明彦<sup>4</sup>, 浅井雅人<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>5</sup>, 市川進一<sup>1</sup>, 塚田和明<sup>1</sup>,  
秋山和彦<sup>1</sup>, 豊嶋厚史<sup>6</sup>, 工藤久昭<sup>3</sup>

I. NISHINAKA<sup>1</sup>, M. TANIKAWA<sup>2</sup>, S. GOTO<sup>3</sup>, Y. NAGAME<sup>1</sup>, K. NISHIO<sup>1</sup>,  
A. YOKOYAMA<sup>4</sup>, M. ASAI<sup>1</sup>, H. HABA<sup>5</sup>, S. ICHIKAWA<sup>1</sup>, K. TSUKADA<sup>1</sup>,  
K. AKIYAMA<sup>1</sup>, A. TOYOSHIMA<sup>6</sup>, and H. KUDO<sup>2</sup>

原研・先端基礎研<sup>1</sup>, 東大<sup>2</sup>, 新潟大<sup>3</sup>, 金沢大<sup>4</sup>, 理研<sup>5</sup>, 大阪大<sup>6</sup>

<sup>1</sup> Advanced Science Research Center, JAERI

<sup>2</sup> School of Science, University of Tokyo

<sup>3</sup> Department of Chemistry, Niigata University

<sup>4</sup> Department of Chemistry, Faculty of Science, Kanazawa University

<sup>5</sup> Radioisotope Technology Division, Cyclotron Center, RIKEN

<sup>6</sup> Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka University

原子核の陽子や中性子の殻効果は、原子核の形状を決める重要な役割を果している。また非対称に質量分割する分裂モードでは、観測された分裂片質量分布の形状や運動エネルギーの分裂片質量依存性の特徴から、分裂時の形状に分裂片殻構造が強く影響していると考えられている。しかし、核分裂障壁から切断点への変形過程で、殻効果がどのように分裂核の変形に影響し、最終的な質量分割を決めているのか分かっていない。一般に殻効果は励起エネルギーの上昇にともない弱まる [1]。そこで核分裂片の収率の励起エネルギー変化から、殻効果が分裂核の質量分割機構にどのような役割を果しているか調べた。

原研タンデム加速器施設に設置した核分裂片二重飛行時間測定装置を用いて、<sup>232</sup>Th の陽子誘起核分裂で生成する核分裂片対の飛行時間を同時測定した。10.0, 11.5, 13.0 MeV で 24 万, 38 万, 47 万事象を計測した。得られた飛行時間から運動量と質量の保存則に基づいて質量分布と全運動エネルギーを求めた。

13 MeV の陽子誘起核分裂で観測した事象を核分裂片質量数と全運動エネルギー (TKE) の相関図 (図 1) に示した。非対称分裂モードの 2 つのピークと対称分裂モードの小さなピークがある。質量分布を重い分裂片の質量数の関数として図 2 に示した。曲線は運動エネルギー分布の 2 成分解析から求めた非対称・対称分裂モードの質量分布である。入射エネルギーの増加とともに対称分裂モードが増加している。これはアクチノイド核分裂に見られる一般的な特徴である。

図 3 は非対称分裂モードの 10 MeV の収率に対する 11.5, 13.0 MeV の収率比である。陽子数 50, 中性子数 82 の球形殻効果をもつ質量数 132 近辺の分裂片の収率比は、ほとんど

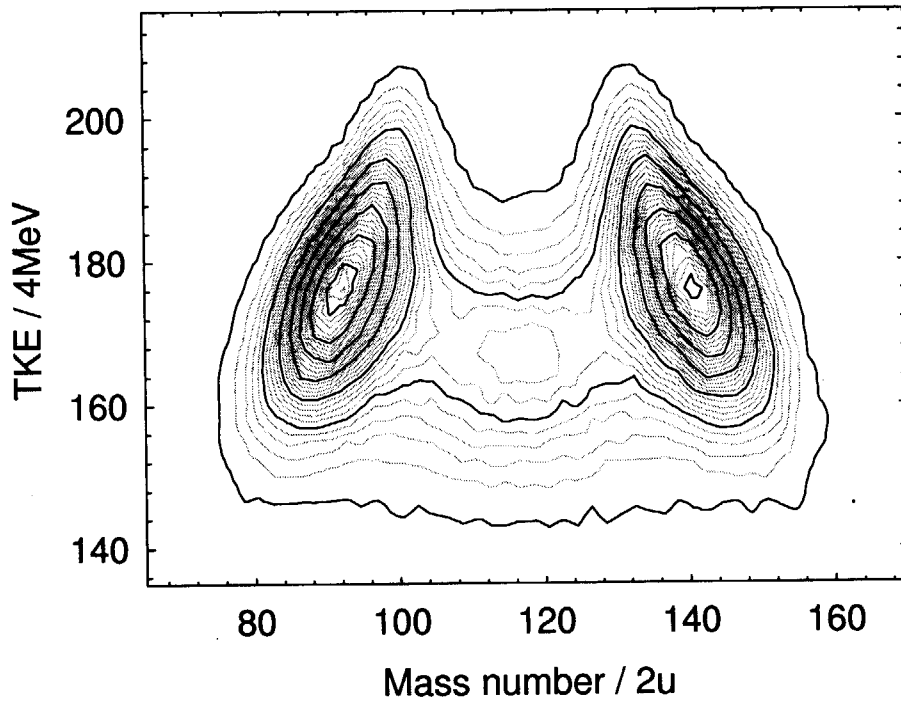


図 1: 核分裂片質量・全運動エネルギーの相関図

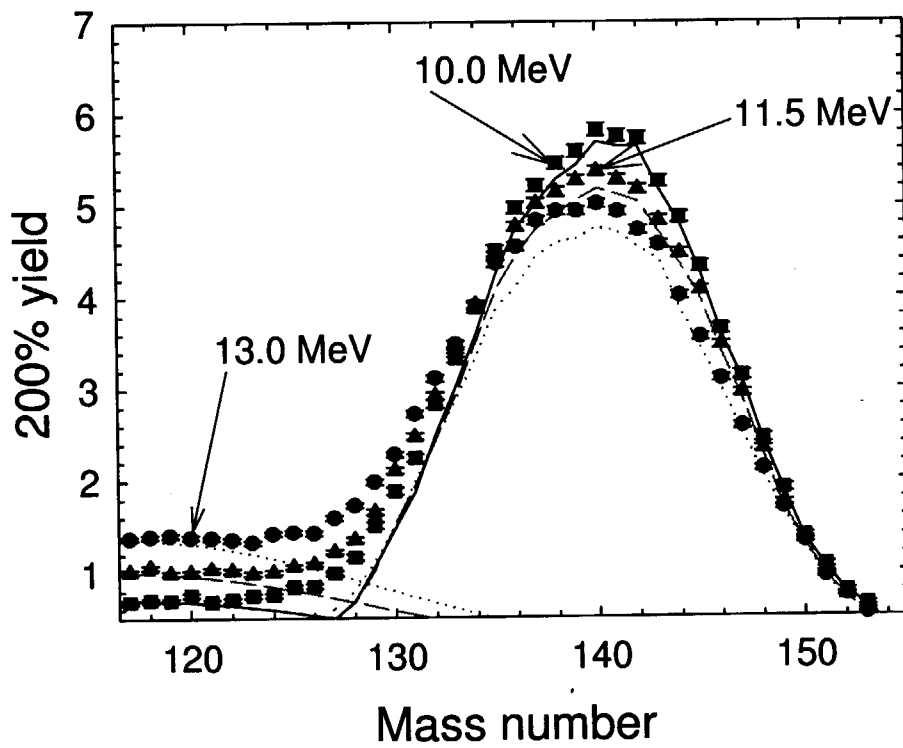


図 2: 質量分布

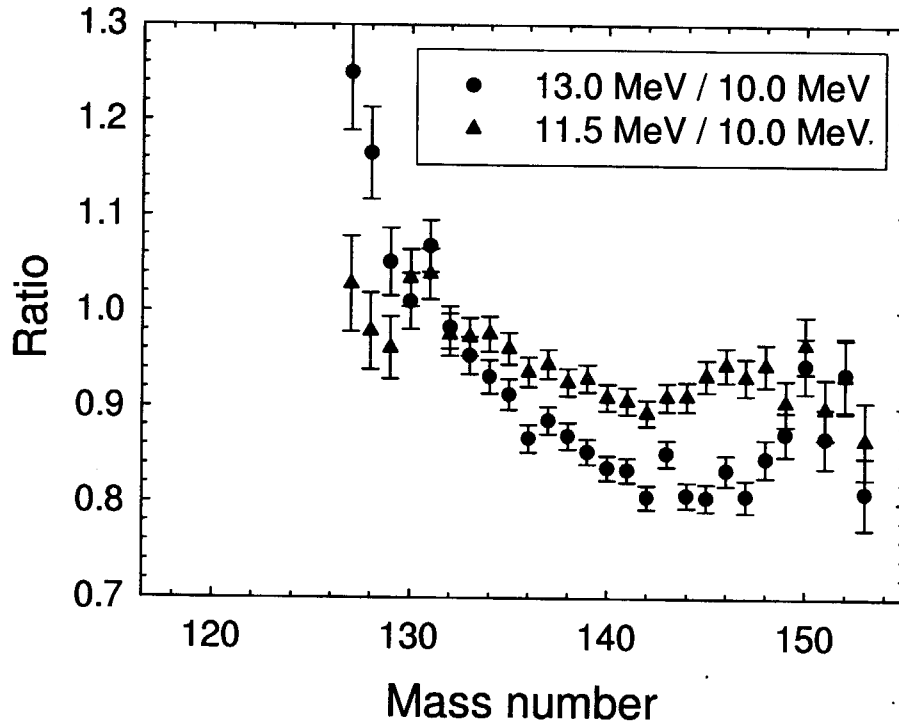


図 3: 質量収率比

変化していないが、中性子数 86-88 の変形殻効果をもつ質量数 143 近辺の分裂片の収率比が、入射エネルギーの上昇とともに大きく減少している。

これとは反対に、自発核分裂、熱中性子核分裂などの低エネルギー核分裂では、陽子数 50、中性子数 82 の球形殻効果をもつ質量数 132 近辺の分裂片の収率が、励起エネルギーの増加にともない減少することが観測されている [2]。このことは、分裂片殻効果の観点から、より大きな安定性をもつ陽子数 50、中性子数 82 の球形殻効果が、励起エネルギー上昇にともない、減衰したためであると考えられている [2]。

図 3 に示した球形殻効果と変形殻効果をもつ分裂片の相対収率の励起エネルギー変化は、低エネルギー核分裂でのエネルギー変化に反するもので、分裂片殻効果の観点から理解することができない。その機構は明らかではない。

今後、ウラン同位体 ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ) 陽子誘起核分裂の実験を行い、分裂核の殻効果の観点から、今回観測した非対称核分裂モードにおける球形殻効果の励起エネルギー変化が、どのような機構によるものか調べる予定である。

## References

- [1] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin, and A. S. Tishin., Sov. J. Nucl. Phys. **21** (1975) 255.
- [2] P. Armbruster, Rep. Prog. Phys. **62** (1999) 465.



### 3.3.3 ノーベリウムの陽イオン交換挙動に関する研究

豊嶋厚史<sup>1,2</sup>, 塚田和明<sup>1</sup>, 秋山和彦<sup>1</sup>, 浅井雅人<sup>1</sup>, 金子哲也<sup>1</sup>, 西中一朗<sup>1</sup>, 市川進一<sup>1</sup>,  
永目論一郎<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>3</sup>, 重川充<sup>2</sup>, 岩崎充宏<sup>2</sup>, 谷勇氣<sup>2</sup>, 長谷川浩子<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>2</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究所先端基礎研究センター

<sup>2</sup>大阪大学大学院理学研究科

<sup>3</sup>理化学研究所加速器基盤研究部

## CATION EXCHANGE BEHAVIOR OF NOBELIUM

A. TOYOSHIMA<sup>1,2</sup>, K. TSUKADA<sup>1</sup>, K. AKIYAMA<sup>1</sup>, M. ASAI<sup>1</sup>, T. KANEKO<sup>1</sup>,  
I. NISHINAKA<sup>1</sup>, S. ICHIKAWA<sup>1</sup>, Y. NAGAME<sup>1</sup>, H. HABA<sup>3</sup>, M. SHIGEKAWA<sup>2</sup>,  
M. IWASAKI<sup>2</sup>, Y. TANI<sup>2</sup>, H. HASEGAWA<sup>2</sup>, A. SHINOHARA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

<sup>3</sup>Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka University

<sup>2</sup>Cyclotron Center, RIKEN

Brüchle らは $\alpha$ -ヒドロキシイソ酪酸( $\alpha$ -HIBA)溶液中における 3 価メンデレビウム( $Md^{3+}$ )と 3 価ローレンシウム( $Lr^{3+}$ )の陽イオン交換挙動を調べ、 $Lr^{3+}$ のイオン半径がアクチノイド収縮の系統性に比べて拡大していると報告した[1]。この特異な現象を詳しく検証するには両者の中間に位置するノーベリウム( $No$ )のイオン半径を決定する事が重要となるが、 $No$ は水溶液中で 2 価イオンとして存在するため、これまでに  $No^{3+}$ のイオン半径は得られていない。そこで、酸化過程を加えた $\alpha$ -HIBA 溶液系での陽イオン交換による実験法を考案し、 $No$ のイオン交換実験に向けた基礎実験をこれまで行ってきた。イオン半径導出には、 $\alpha$ -HIBA 溶液系の陽イオン交換の分配係数( $K_d$  値[ml/g])の対数がランタノイド元素とアクチノイド元素のイオン半径に対して同じ直線を示す事を利用する。酸化条件は  $Ce^{3+} \rightarrow Ce^{4+}$ の酸化電位が  $No$ のそれに近い事から[2]、キャリアフリーの  $^{139}Ce$  トレーサーを用いて検討し、過ヨウ素酸を用いて酸化を行う事を決定した。本研究では、 $^{255}No$  を模擬して重ランタノイド元素( $Tm$ ,  $Er$ ,  $Ho$ ,  $Dy$ ,  $Tb$ )の短寿命核種を用い、イオン半径導出の基礎データとしてそれらの陽イオン交換挙動を調べた。

実験は原研タンデム加速器施設において行った。それぞれ  $^{141}Eu(^{12}C, xn)$ ,  $^{141}Sm(^{12}C, xn)$ ,  $^{141}Nd(^{12}C, xn)$  及び  $^{141}Nd(^{12}C, pxn)$  反応により生成した  $^{160}Tm$ ,  $^{155}Er$ ,  $^{150}Dy$  及び  $^{152}Tb$  を  $He/KCl$  ガスジェットにより搬送し、またガスジェット捕集中に成長する  $^{156}Ho$  を用い、迅速イオン交換分離装置(AIDA)[3]によりイオン交換を行った。まず、全く酸化を伴わないイオン交換[条件(1)]を行ってこの条件下でランタノイド元素の分離が十分に行われる事を確認し、次に酸化過程を伴うイオン交換[条件(2),(3)]を行い、条件(1)との比較により分離を検討した。10 分間捕集した生成物を 0.1 M 塩酸[条件(a)]あるいは約 70°C の 1.0 M 過ヨウ素酸溶液 200  $\mu$ L[条件(2),(3)]に溶解して陽イオン交換カラム(1.6 mm $\phi$   $\times$  30 mm)に導入し、0.5 M 酢酸緩衝溶液 800  $\mu$ L[条件(1),(2)]あるいは過ヨウ素酸と 0.5 M 酢酸緩衝溶液の混合溶液 800  $\mu$ L[条件(3)]を流してカラム内の pH 調製を行った後、 $\alpha$ -HIBA 溶液[条件(1),(2)]あるいは過ヨウ素酸と $\alpha$ -HIBA の混合溶液[条件(3)]を用いてランタノイド元素を溶離した。その溶離液を 9~20 フラクションに分取し、Ge 検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって溶離曲線を作成した。

溶離液がpH=3.7での条件(1), (2)及び(3)での溶離曲線をそれぞれ Fig.1(a), (b)及び(c)に示す. 全く酸化を伴わない条件(1)を基準にすると, 条件(2)では最初に溶離するTmやErが500  $\mu\text{L}$  付近に重なってピークを形成するが, それより後に溶離するHo, Dy及びTbは条件(1)とほとんど同じ位置にピークを形成した. また, 条件(3)では、ピークの全てのランタノイドがより早く溶離したが, 条件(2)のようなピークの重なりはなかった.

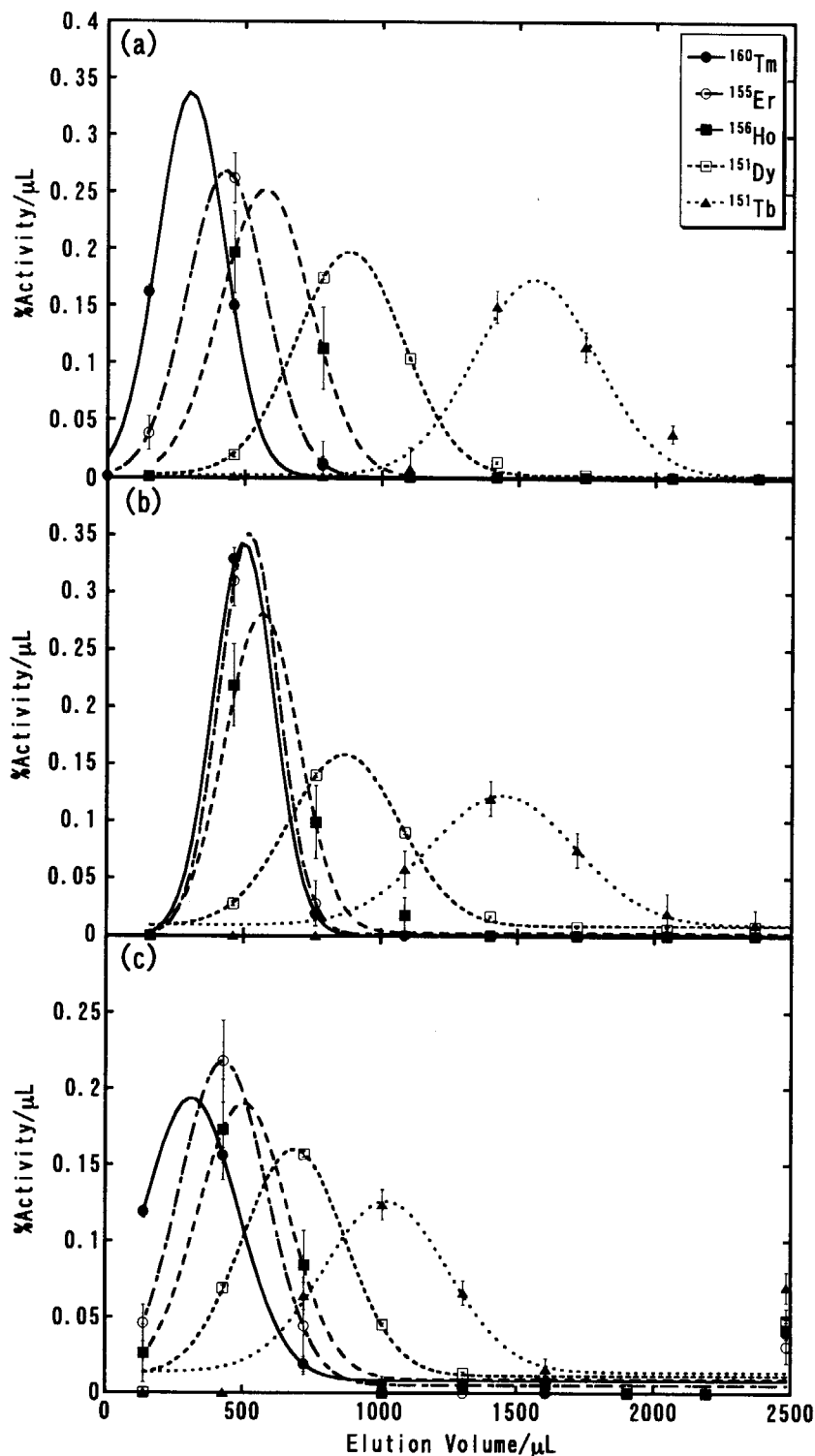


Fig.1. Elution curves for conditions (1), (2), and (3).

次に、それぞれの溶離ピーク位置から  $K_d=(V-V_0)/M[V:溶離体積[mL], V_0:デッドボリューム[mL], M:カラム樹脂量[g]]$ により算出した  $K_d$  値と 6 配位のイオン半径の相関を図 2 に示す。条件(1)及び(2)を図 2(a)に条件(3)を図 2(b)に示した。図 2(a)に示されるように、条件(2)ではどの pH においても溶離の初めの部分でピークが重なった。次に、図 2(b)から条件(3)ではそれぞれの  $K_d$  値は直線関係を示した。より酸化条件の厳しい条件(3)において  $K_d$  値とイオン半径に直線関係が示された事から、この条件において No のイオン交換実験を行う事に決定した。また、No の溶離位置は Md と Lr の間であると予想され、それぞれに対応する Er と Ho の溶離位置の差が十分適当である pH=3.5 という条件において、今後 No のイオン交換実験を行う予定である。

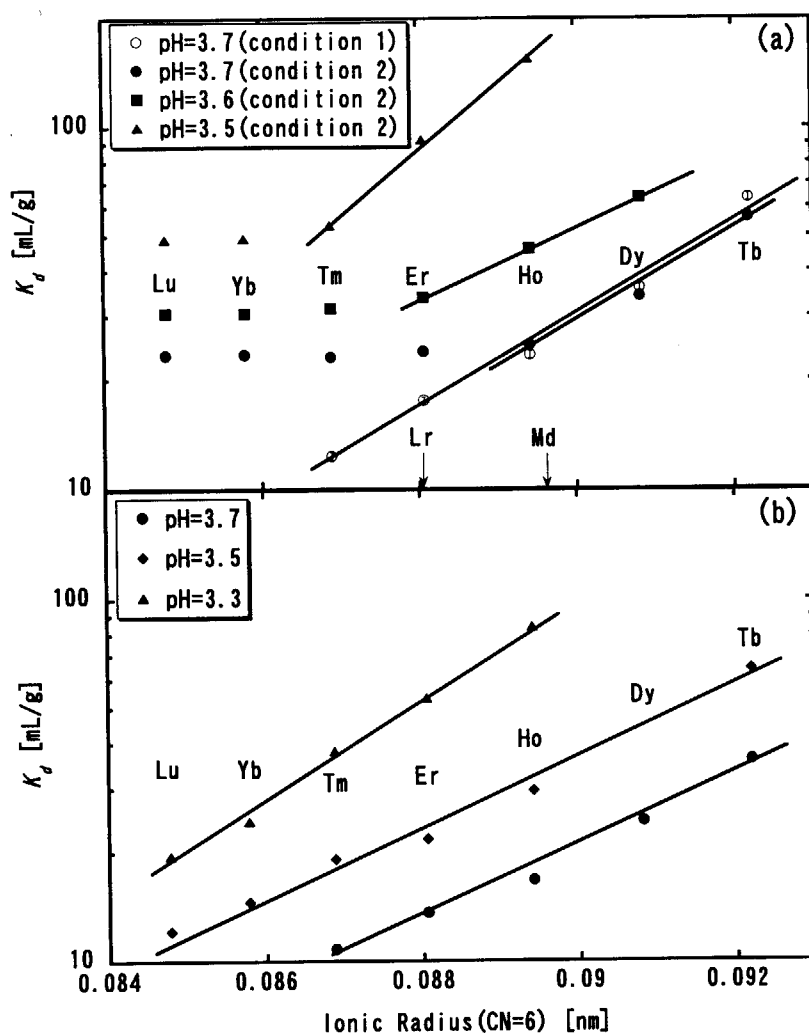


Fig.2. Correlations between the  $K_d$  values and ionic radii of heavy lanthanides.

【参考文献】

- [1] W. Bröchle *et al.*: *Inorg. Chim. Acta* **146**, 267 (1988).
- [2] R. J. Silva *et al.*: *J. Inorg. Nucl. Chem.* **31**, 3405 (1969).
- [3] K. Tsukada *et al.*: *JAERI-Review* **29**, 49 (2002).



### 3.3.4 104番元素ラザホージウムの溶液化学的研究 Aqueous Chemistry of Rutherfordium (Element 104)

塚田和明

原研先端基礎研究センター

K. TSUKADA

Advanced Science Research Center, JAERI

超アクチノイド元素のような重い原子系では、電子軌道に対する相対論効果により化学的性質が周期性からずれると理論的に予測されている[1]。加速器を用いて116番元素まで合成の報告があるこれら超アクチノイド元素は生成量が極めて少ない上に寿命が短く[2]、周期表上のどの族の化学的性質を示すかという基本的な研究でさえ108番元素ハッシウム(Hs)まで行われているにすぎない[3]。また、104番元素ラザホージウム(Rf)および105番元素ドブニウム(Db)ではいくつかの実験報告が周期性からのずれを指摘しているが、実験的精度を考えると十分な議論がされてきたとは言い難い[4]。

原研タンデム加速器ではドイツ重イオン研究所(GSI)と協力して測定系まで全自動化した超小型のオンライン液体クロマトグラフィーを開発し超アクチノイド元素の溶液化学的研究を行ってきた。そしてタンデム協力研究のもとで理研・阪大・新潟大・金沢大・筑波大・都立大・GSI・Mainz大などと協力してRfのHCl、HNO<sub>3</sub>およびHF系における陰イオン交換挙動を調べた。これまでにHClおよびHNO<sub>3</sub>系ではRfが周期表第4族に位置付けられることを確認し[5]、特に図1に示したHCl濃度に対するRfおよびHf、Zrの陰イオン交換樹脂への吸着率の変化の傾向はRfがHfやZr

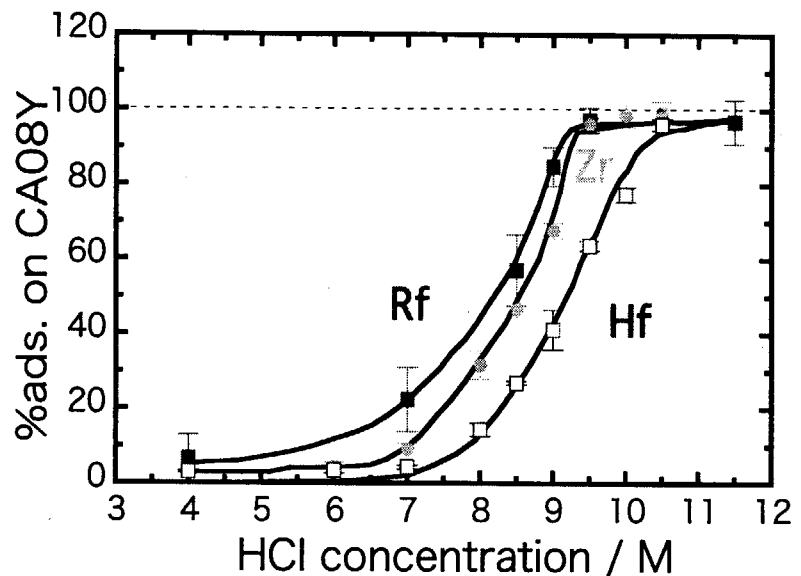


図1 塩酸系陰イオン交換分離におけるRfおよびHf、Zrの吸着率

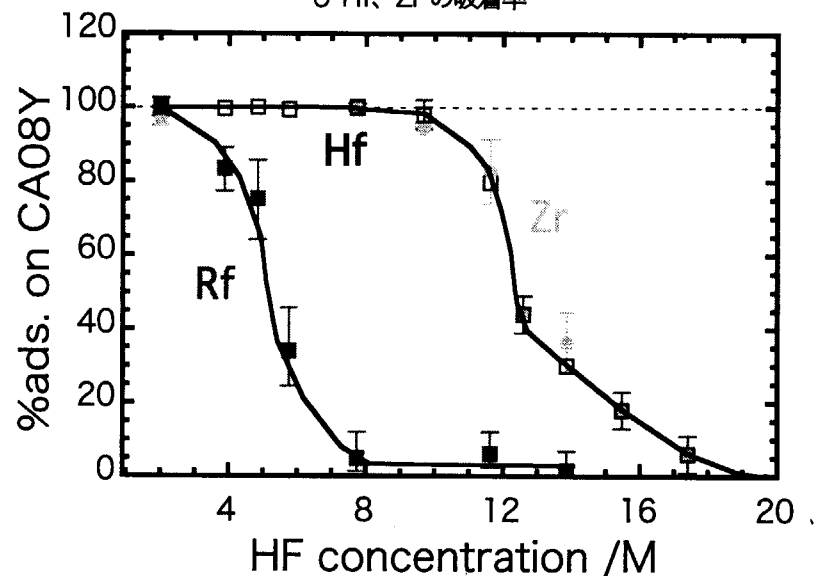


図2 フッ化水素酸系陰イオン交換分離におけるRfおよびHf、Zrの吸着率



と同じ陰イオン錯体を形成することを期待させる。また、その塩化物錯体の樹脂への吸着性は  $Rf \geq Zr > Hf$  の順であり周期表上の順列と異なっており非常に興味深い。次に、このような同族元素（4族）間の微妙な違いを確認する為に HF 系の陰イオン交換挙動を観測した。その結果、図2にある様に樹脂への吸着率から、Zr および Hf の分離挙動と Rf は明らかに異なることがわかった。

このことは Rf が同条件下で Zr や Hf と異なる化学種を形成する可能性を示唆している。

上記のような違いはイオン半径や相対論効果の影響などいかなる原因によるものか定量的に理解することが重要である。しかし、同条件下での Zr や Hf の溶存状態に関する報告は少なく、実際にどのような化学種として存在するかといった基本的な情報さえない。そこで、溶液中の錯体構造解析に有効な X線吸収分光法 (XAFS) を Zr の溶存状態研究に応用した。KEK 放射光施設で EXAFS 測定を行った結果、HCl 系では HCl 濃度に対する分配係数の変化が配位している酸素と塩素イオンの交換として観測でき、陰イオン交換樹脂に 100% 吸着するような条件では  $ZrCl_6^{2-}$  といった化学種をとることが推定された。このことは Zr と同じ傾向を示しつつ吸着率が上昇する Rf でも同様な配位子の交換が起こり、濃い塩酸中では  $RfCl_6^{2-}$  といった分子種として存在すると推定できる。このような XAFS による溶存状態研究は他にも Zr の HF 系や Hf などへ応用も期待でき、得られる化学種や金属と配位子の原子間距離などの情報は、理論計算をより精度良く行うことを可能にし、超アクチノイド元素の電子状態に関する新しい情報が期待できる。

現在、国内では原研タンデム加速器が超アクチノイド元素の化学実験を行える唯一の実験施設である。しかし、現状ではビーム量の問題から 105 番元素 Db の実験にとどまらざるを得ない。106 番以上の元素の化学的性質に関する実験は 5 年ほど前に報告された新しい領域であり[6]、その統計など不十分な点は否めず、より一層の研究が必要である。国内の研究グループが今後このような研究分野をリードし大きく貢献していくためには海外の研究施設を利用することを視野に入れることを忘れてはならないが、国内の施設を充実させることが必要である。その点では原研タンデム加速器のアップグレード、あるいは最近施設が整い始めた理研 R R C および東北大サイクロトロン施設において、106 番元素以上の化学的性質に関する実験が進展することを期待したい。

本研究は原研先端基礎研究センター重元素単一原子化学研究グループを中心にタンデム協力研

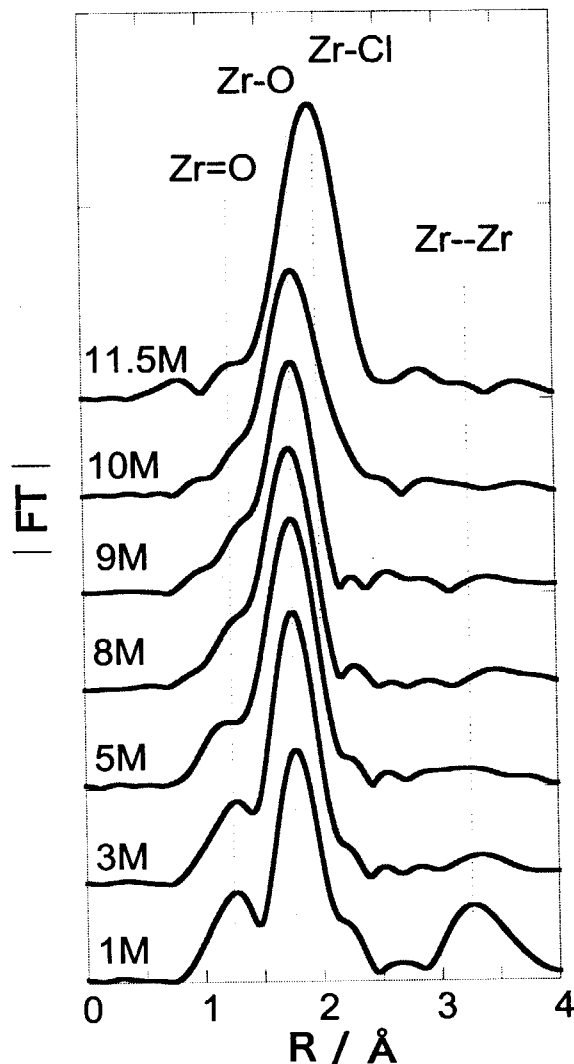


図3 1-11.5M の塩酸溶液における Zr(M) の動径構造関数。

究のもと大阪大学、理化学研究所、新潟大学、金沢大学、東京都立大学、筑波大学、徳島大学の協力を得て行っている。

References

- [1] B. Fricke et al.: Phys. Lett. **30B**, 317 (1969).
- [2] Y. Oganessian et al.: Nature **400**, 242 (1999).
- [3] Ch.E. Duellingmann et al.: Nature **418**, 859 (2002).
- [4] J.V. Kratz: *Heavy Elements and Related New Phenomena*, eds. Greiner and Gupta, World Scientific, Singapore, (1999), p.129.
- [5] H. Haba et al.: J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 143 (2002).
- [6] M. Schaedel, et al.: Nature **388**, 55 (1997).



### 3.3.5 EC DECAY OF $^{241}\text{Bk}$

#### $^{241}\text{Bk}$ の EC 崩壊

M. ASAI,<sup>1</sup> K. TSUKADA,<sup>1</sup> S. ICHIKAWA,<sup>1</sup> M. SAKAMA,<sup>2</sup> H. HABA,<sup>3</sup> Y. NAGAME,<sup>1</sup>  
I. NISHINAKA,<sup>1</sup> K. AKIYAMA,<sup>1</sup> A. TOYOSHIMA,<sup>1</sup> T. KANEKO,<sup>1</sup> Y. OURA,<sup>4</sup>  
Y. KOJIMA,<sup>5</sup> M. SHIBATA<sup>6</sup>

浅井雅人,<sup>1</sup> 塚田和明,<sup>1</sup> 市川進一,<sup>1</sup> 阪間 稔,<sup>2</sup> 羽場宏光,<sup>3</sup> 永目諭一郎,<sup>1</sup> 西中一朗,<sup>1</sup> 秋山和彦,<sup>1</sup>  
豊嶋厚史,<sup>1</sup> 金子哲也,<sup>1</sup> 大浦泰嗣,<sup>4</sup> 小島康明,<sup>5</sup> 柴田理尋<sup>6</sup>

<sup>1</sup>Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute

<sup>2</sup>Department of Radiologic Science and Engineering, The University of Tokushima

<sup>3</sup>Radioisotope Technology Division, Cyclotron Center, RIKEN

<sup>4</sup>Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University

<sup>5</sup>Graduate School of Engineering, Hiroshima University

<sup>6</sup>Facility for Nuclear Materials, Nagoya University

原研先端基礎セ,<sup>1</sup> 徳島大医,<sup>2</sup> 理研,<sup>3</sup> 都立大院理,<sup>4</sup> 広島大院工,<sup>5</sup> 名大工<sup>6</sup>

The decay of neutron-deficient Bk nuclei has been studied scarcely because of experimental difficulties. These nuclei predominantly decay via the electron capture (EC), and the production cross sections are around the order of microbarn. Thus, to measure  $\gamma$  rays following their EC decays, an isolation of the nuclei of interest from a large amount of other reaction products is indispensable. The most neutron-deficient Bk isotope already known is  $^{238}\text{Bk}$  ( $T_{1/2}=144$  s) [1] and the second is  $^{240}\text{Bk}$  (4.8 min) [2,3], which were identified through the detection of EC-delayed fission events. The third one is  $^{242}\text{Bk}$  (7.0 min) [4] through the observation of Cm  $K_{\alpha}$  X rays in chemically separated Bk fractions. However, no  $\gamma$  transitions have been observed for these nuclei. The odd-mass  $^{239,241}\text{Bk}$  were left unknown. In the present work, we employed an on-line isotope separator (ISOL) to identify  $^{241}\text{Bk}$  and studied its EC decay [5].

The nucleus  $^{241}\text{Bk}$  was produced by the  $^{239}\text{Pu}(^6\text{Li}, 4n)$  reaction at the JAERI tandem accelerator facility. A stack of twenty-one  $^{239}\text{Pu}$  targets with an effective thickness of about  $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  each was bombarded with a  $^6\text{Li}$  beam of 200 pA intensity. The beam energy was 34–42 MeV on targets. Reaction products recoiling out of the targets were stopped in He gas loaded with  $\text{PbI}_2$  clusters, and transported into an ion source of the ISOL with a gas-jet stream. Ions accelerated with 30 kV were mass-separated with a resolution of  $M/\Delta M \sim 800$ , and implanted into an aluminum-coated Mylar tape in a tape transport system. The implanted source was periodically transported to a measuring position equipped with a short coaxial Ge detector (ORTEC LOAX) and a 35%  $n$ -type Ge detector (ORTEC GAMMA-X) at 400 s intervals. Gamma-ray singles and  $\gamma$ - $\gamma$  coincidence events were recorded event by event together with time information.

Figure 1 shows a  $\gamma$ -ray spectrum in coincidence with Cm K X rays observed at the mass-241 fraction. Three  $\gamma$  lines were clearly observed in the spectrum, indicating that they are associated with the EC decay of  $^{241}\text{Bk}$ . Coincidence relationships among these  $\gamma$  rays are not clear owing to less statistics. Relative intensities of 152, 211, and 262 keV  $\gamma$  rays were deduced to be 6(2), 6(2), and 10(3), respectively, from the singles spectrum. The

half-life of  $4.6 \pm 0.4$  min was derived from the decay curves of Cm  $K_{\alpha 1}$ ,  $K_{\alpha 2}$ , and  $L_{\alpha}$  X rays.

The half-life of  $^{241}\text{Bk}$  was predicted by various theoretical calculations; 15 min [6], 19.9 min [7], 15.5 min [8], and 9.09 min [9], all of which are 2–4 times longer than that of the experiment. Alpha-decay studies of  $^{243-249}\text{Es}$  [10] suggested that the ground state of  $^{239,241}\text{Bk}$  would have the  $\pi 7/2^+[633]$  configuration, not the  $\pi 3/2^- [521]$  one like  $^{243,245}\text{Bk}$ . EC transitions from the  $\pi 3/2^- [521]$  ground state to low-energy odd-Cm levels would have large  $\log ft$  values because there are no Nilsson states whose asymptotic quantum numbers satisfy the selection rule of the allowed transition [11]. On the other hand, EC transitions from the  $\pi 7/2^+[633]$  ground state can populate many positive parity states, especially the unoccupied  $\nu 7/2^+[624]$  state strongly; the  $\log ft$  value of the  $\pi 7/2^+[633] \rightarrow \nu 7/2^+[624]$  transition is expected to be about 5.0–5.5 [5]. This small  $\log ft$  value can reasonably explain the 4.6 min half-life; the partial half-life of this transition becomes 4.4–14 min by using  $\log ft=5.0-5.5$ ,  $Q_{\text{EC}}=2400$  keV [12], and the  $\nu 7/2^+[624]$  energy of  $\sim 420$  keV.

The observed three  $\gamma$  transitions are also consistent with the large population of the  $\nu 7/2^+[624]$  state. In  $N=145$  isotones, the ground state of  $^{237}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  is the  $\nu 1/2^+[631]$  state, and the  $\nu 5/2^+[622]$  and  $\nu 7/2^+[624]$  states lie in low energy as shown in Fig. 2. The ground state of  $^{241}\text{Cm}$  is also the  $\nu 1/2^+[631]$  state. If the EC decay of  $^{241}\text{Bk}$  populates the  $\nu 7/2^+[624]$  state strongly, the  $\gamma$  transition from the  $\nu 7/2^+[624]$  state to the  $\nu 5/2^+[622]$  one and the transitions from the  $\nu 5/2^+[622]$  state to the  $3/2^+$  and  $5/2^+$  ones in the  $\nu 1/2^+[631]$  band should be observed strongly like the decay patterns in  $^{237}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  [11]. Taking into account the energies and intensities of the observed three  $\gamma$  transitions as well as those of the isotones, we propose a partial decay scheme of  $^{241}\text{Bk}$  as shown in Fig. 2.

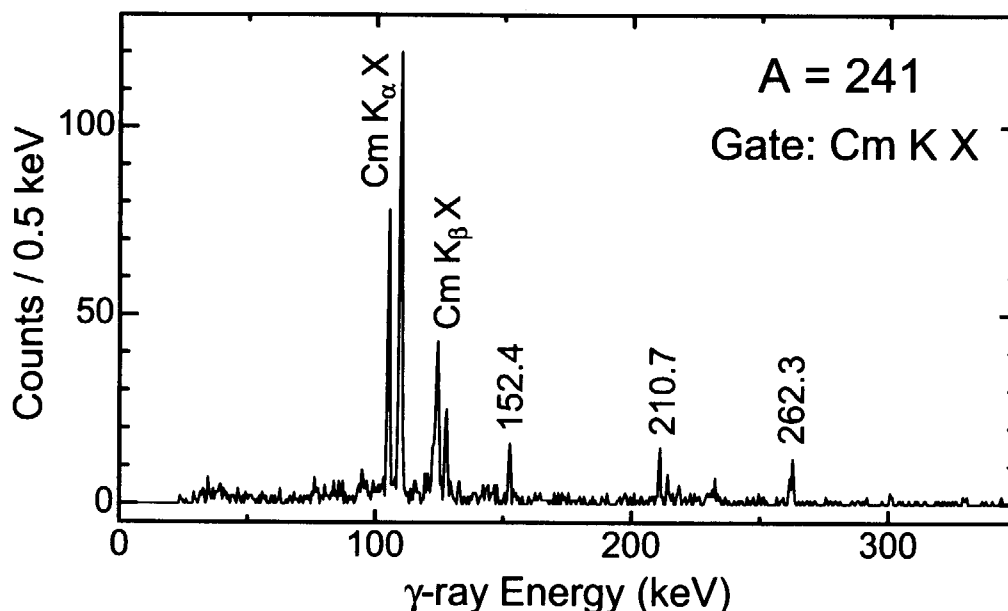


Fig. 1. Gamma-ray spectrum in coincidence with Cm  $K_{\alpha}$  X rays observed at the mass-241 fraction.

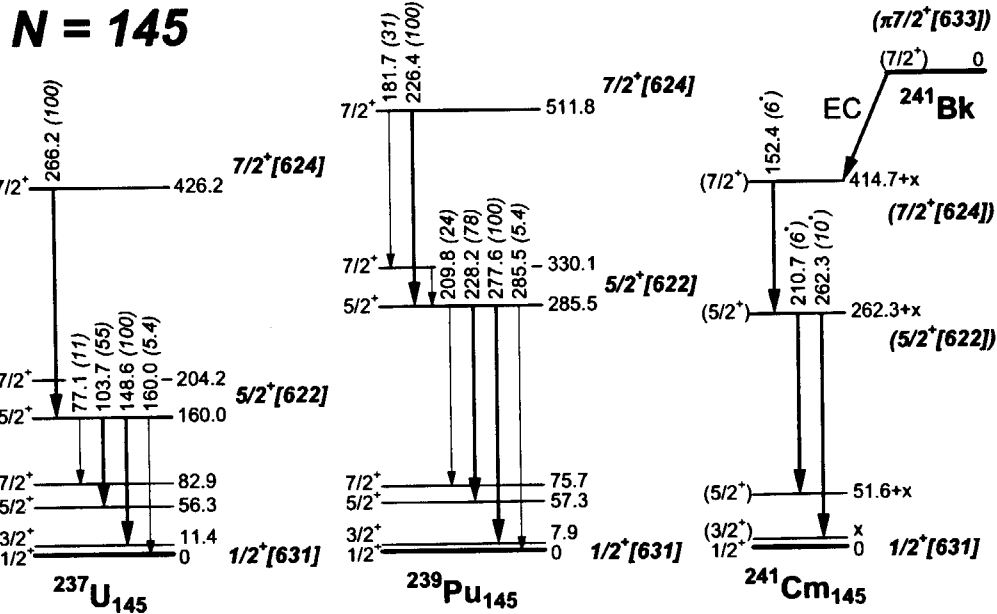


Fig. 2. The  $\nu 1/2^+[631]$ ,  $\nu 5/2^+[622]$ , and  $\nu 7/2^+[624]$  states in the  $N=145$  isotones  $^{237}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , and  $\gamma$  transitions between these states. Relative intensities of  $\gamma$  transitions are given in parentheses. A proposed decay scheme of  $^{241}\text{Bk}$  is also shown.

**References**

- [1] S. A. Kreek, H. L. Hall, K. E. Gregorich, R. A. Henderson, J. D. Leyba, K. R. Czerwinski, B. Kadkhodayan, M. P. Neu, C. D. Kacher, T. M. Hamilton, M. R. Lane, E. R. Sylwester, A. Türler, D. M. Lee, M. J. Nurmi, and D. C. Hoffman, *Phys. Rev. C* **49**, 1859 (1994).
- [2] Yu. P. Gangskii, M. B. Miller, L. V. Mikhaïlov, and I. F. Kharisov, *Sov. J. Nucl. Phys.* **31**, 162 (1980).
- [3] D. Galeriu, *J. Phys. G* **9**, 309 (1983).
- [4] K. E. Williams and G. T. Seaborg, *Phys. Rev. C* **19**, 1794 (1979).
- [5] M. Asai, K. Tsukada, S. Ichikawa, M. Sakama, H. Haba, Y. Nagame, I. Nishinaka, K. Akiyama, A. Toyoshima, T. Kaneko, Y. Oura, Y. Kojima, and M. Shibata, *Eur. Phys. J. A* **16**, 17 (2003).
- [6] K. Takahashi, M. Yamada, and T. Kondoh, *At. Data Nucl. Data Tables* **12**, 101 (1973).
- [7] T. Tachibana, M. Yamada, and Y. Yoshida, *Prog. Theor. Phys.* **84**, 641 (1990).
- [8] M. Hirsch, A. Staudt, K. Muto, and H. V. Klapdor-Kleingrothaus, *At. Data Nucl. Data Tables* **53**, 165 (1993).
- [9] T. Tachibana and M. Yamada, *Proceedings of the International Conference on Exotic Nuclei and Atomic Masses, Arles, 1995* (Editions Frontières, Gif-sur-Yvette, 1995), p. 763; T. Horiguchi, T. Tachibana, H. Koura, and J. Katakura, *Chart of the Nuclides 2000* (Japan Atomic Energy Research Institute).
- [10] Y. Hatsukawa, T. Ohtsuki, K. Sueki, H. Nakahara, I. Kohno, M. Magara, N. Shinohara, H. L. Hall, R. A. Henderson, C. M. Gannet, J. A. Leyba, R. B. Chadwick, K. E. Gregorich, D. Lee, M. J. Nurmi, and D. C. Hoffman, *Nucl. Phys. A* **500**, 90 (1989).
- [11] *Table of Isotopes*, 8th ed., edited by R. B. Firestone and V. S. Shirley (John Wiley & Sons, New York, 1996).
- [12] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, and A. H. Wapstra, *Nucl. Phys. A* **624**, 1 (1997).



### 3.3.6 フッ化水素酸系における Nb, Ta ならびに Pa の陰イオン交換挙動 —105 番元素ドブニウムの溶液化学研究に向けた基礎実験—

Anion exchange behavior of Nb, Ta, and Pa in hydrofluoric acid solutions  
—Model experiments for chemical characterization of element 105, dubnium—

羽場宏光

H. Haba

理化学研究所 加速器基盤研究部

Cyclotron Center, RIKEN

塚田和明, 浅井雅人, 秋山和彦, 豊嶋厚史, 西中一朗, 市川進一, 永目諭一郎  
K. Tsukada, M. Asai, K. Akiyama, A. Toyoshima, I. Nishinaka, S. Ichikawa, and Y. Nagame  
日本原子力研究所 先端基礎研究センター  
Advanced Science Research Center, JAERI

#### はじめに

重い極限領域における原子の電子状態に関する情報を得ることを目的として, 近年, (超)重元素の化学的性質を調べる研究が注目されている. 本研究では, 陰イオン交換法を用いて 105 番元素ドブニウム(Db)のフッ化物錯体形成機構を調べるため, Db の同族元素である Nb, Ta ならびにアクチノイド擬同族元素である Pa の放射性トレーサーを用いて基礎実験を行った.

#### 実験

原研タンデム加速器から得られる陽子ビームを用いて  $^{92}\text{Zr}(p,n)$  ならびに  $^{177}\text{Hf}(p,n)$  反応によってそれぞれ  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  ( $T_{1/2}=10.15\text{d}$ ),  $^{177}\text{Ta}$  ( $T_{1/2}=2.357\text{d}$ ) を製造した. Pa のトレーサーとして,  $^{237}\text{Np}$  と放射平衡にある娘核種  $^{233}\text{Pa}$  ( $T_{1/2}=26.967\text{d}$ ) を化学分離した. これらのトレーサーを用いて, 強塩基性陰イオン交換樹脂(三菱化学 MCI GEL CA08Y)に対する分配係数( $K_d$  値)をバッチ法により 0.11~25.5M のフッ化水素酸濃度範囲で測定した. 一方, 短寿命核  $^{262}\text{Db}$  ( $T_{1/2}=34\text{s}$ ) を模擬したオンラインクロマトグラフ実験を行うため,  $^{90}\text{Zr}(p,n)$  ならびに  $^{178}\text{Hf}(p,n)$  反応によって  $^{90}\text{Nb}$  ( $T_{1/2}=14.60\text{h}$ ) と  $^{178\text{m}}\text{Ta}$  ( $T_{1/2}=9.31\text{min}$ ) を同時に製造した. 標的から反跳分離された生成核を He/KCl ガスジェットによって自動高速液体クロマトグラフ装置(Automated Ion-exchange separation apparatus coupled with the Detection system for Alpha spectroscopy, AIDA)[1]へ搬送し, 5.8~26.1M HF で溶液化しながら陰イオン交換カラム(1.0mm  $\phi$   $\times$  3.5mm)に注入した. 溶離液は 8 フラクションに分取し, 樹脂に残存した Nb と Ta をすべて溶離するため最後に 6M  $\text{HNO}_3$ -0.015M HF を流して溶離曲線を取得した.  $^{90}\text{Nb}$  ならびに  $^{178\text{m}}\text{Ta}$  の定量は, Ge 半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーによって行った.

#### 結果と考察

バッチ実験で得た Nb, Ta ならびに Pa の  $K_d$  値は, HF 濃度の増加とともに減少し, 1M <

[HF] < 12M の範囲では  $\log[\text{HF}]$  対  $\log K_d$  プロットに直線関係が見られた。その傾き (Nb:  $-2.3 \pm 0.1$ , Ta:  $-2.6 \pm 0.1$ , Pa:  $-2.8 \pm 0.1$ ) や吸着順列 (Ta > Nb > Pa) は,  $\text{NbOF}_5^{2-}$ ,  $\text{TaF}_7^{2-}$ ,  $\text{TaF}_8^{3-}$  ならびに  $\text{PaF}_8^{3-}$  で表される既知の化学種[2,3]の電荷やイオン半径を反映していると考えられ興味深い。

$^{262}\text{Db}$  の単一原子化学実験では, HF 溶液と 6M  $\text{HNO}_3$ -0.015M HF 溶液の 2 フラクシオンをそれぞれ約 150  $\mu\text{L}$  分取し, 樹脂への吸着率(%*Ads.*)を測定する。今回 AIDA を用いて測定した Nb と Ta の溶離曲線から %*Ads.* と  $K_d$  値との間にスムーズな関係が得られ, これから Db の  $K_d$  値を求めることができる。今後, >1M HF 系で Db の  $K_d$  値を測定し同族元素の結果と比較することから, Db の化学種やイオン半径に関する情報を引き出していく予定である。

### 参考文献

- [1] Tsukada *et al.*, JAERI-Review 2002-029, (2002) p. 49.
- [2] Korkisch, *Handbook of Ion Exchange Resins*, (CRC Press, Florida, 1989), Vol. IV, p. 257.
- [3] Katz *et al.*, *The Chemistry of the Actinide Elements*, (Chapman and Hall, London, 1986), Vol. 1, p. 102.



### 3.3.7 $^{238}\text{U}(\text{p},\text{f})$ で生成する中性子過剰希土類原子核の 崩壊エネルギーの測定

## $Q_{\beta}$ Measurements of Neutron-Rich Rare-Earth Nuclei Produced with Proton Induced Fission of $^{238}\text{U}$

名古屋大学工学研究科  
柴田理尋、末松 倫、河出清

原研先端研超アクチノイド Gr  
市川進一、浅井雅人、塚田和明、長明彦、永目諭一郎

広島大学工学研究科  
小島康明

京都大学原子炉実験所  
谷口秋洋

Michihiro SHIBATA, Osamu SUEMATSU, Kiyoshi KAWADE,  
Department of Energy Engineering and Science, Nagoya University

Shin-ichi ICHIKAWA, Masato ASAI, Kazuaki TSUKADA, Akihiko OSA,  
Yuichiro NAGAME,  
Japan Atomic Energy Research Institute

Yasuaki KOJIMA,  
Quantum Energy Applications, Graduate School of Engineering, Hiroshima University

Akihiro TANIGUCHI  
Research Reactor Institute, Kyoto University

#### 1. はじめに

原子質量と $\beta$ 半減期は原子核の基本的物理量であり、それらを精度良く測定することによって原子核構造の研究さらには原子核の存在限界の解明および元素合成過程の解明などに向けた理論的な研究の重要なデータとなる。

新核種の多くは $\beta$ 半減期は決定されているが、原子質量が実験的に決定されていないものは少ない。未知核種の $\beta$ 半減期を理論的に予想する場合、親核と娘核の原子質量の差である崩壊エネルギー( $Q_{\beta}$ )が大きく影響するため、原子質量を実験的に決定することがより重要である。原子質量の決定は、最近では、イオントラップを用いる方法(ISOLDE)やESR(GSI)を用いる方法が急速に発展しているが、 $Q_{\beta}$ 測定もまた高精度な方法の一つである。異なる方法で原始質量を決定することはデータの信頼性からも重要なことである。

我々は、原研タンデム加速器に附置したオンライン質量分離装置(JAERI-ISOL)を用いて、 $^{238}\text{U}$ の陽子誘起核分裂から質量数 160 以上の中性子過剰な希土類領域の新核種を探索し $\beta$ 半減期を決定するとともに崩壊核分光を通して核構造の研究を行ってきた<sup>1-5)</sup>。一方、 $Q_{\beta}$



決定のために高い検出効率を持つ全吸収検出器を開発し、京都大学原子炉に附置したオンライン質量分離装置(KUR-ISOL)を用いて、質量数 150 近傍の中性子過剰核の  $Q_{\beta}$  測定を行い、崩壊図式の情報を用いずに 100keV 程度の精度で決定した<sup>6,7)</sup>。そこで、この検出器を JAERI-ISOL に適用し新核種の  $\beta$  半減期と  $Q_{\beta}$  を共に決定し、この領域における  $\beta$  半減期および質量公式の検証を行った。理論的な質量公式の精度は、500keV 程度であるので、それより良い精度(100keV 程度)で測定することを目標とした。

## 2. 実験

目的とする不安定核種は、原研タンデム加速器で加速された陽子(16MeV、 $\sim 3\mu\text{A}$ )を 32mg の  $^{238}\text{U}$  ターゲットに照射して作成した。それらをガスジェット結合型イオン源でイオン化したのち質量分離し、不安定核ビームをマイラーテープ式収集装置で収集して  $Q_{\beta}$  を測定した。対象とした核種は  $^{159,158}\text{Pm}$ 、 $^{159,161}\text{Sm}$ 、 $^{166}\text{Tb}$  である。全吸収検出器は、大型の BGO シンチレーション検出器(12cm $\times$ 10cm)を 2 台向かい合わせたもので、中心部におかれた線源の放射線を高効率で測定することを目的としたものである。

検出器のエネルギー較正は、 $Q_{\beta}$  が精度良く決定されている核種( $^{91-93}\text{Rb}$ 、 $^{139-141}\text{Cs}$ 、 $^{142-144}\text{La}$ 、 $^{148}\text{Pr}$ )を測定し 3.4-8.1MeV に渡って行い、解析方法は簡便なルートプロット法をスペクトルの  $Q_{\beta}$  近傍に適用した。これらの解析は崩壊図式の情報を用いずに行い、その結果、エネルギー較正曲線はそのエネルギー範囲では、ほぼ直線と見なすことができた。すなわち、本検出器では、新核種のような崩壊図式の情報がほとんどわかっていない核種についても  $Q_{\beta}$  の測定が可能であることを意味する。得られたスペクトルの例( $^{166}\text{Tb}$ )を示す(Fig.1)。また、スペクトルの  $Q_{\beta}$  近傍のカウントの時間変化を追い  $\beta$  半減期を測定し 4.3s を得た。これは kX 線の崩壊曲線から決定した値(4.8(8)s)とほぼ一致していることから、確かに  $^{161}\text{Sm}$  の全吸収スペクトルが測定できたと判断した。本検出器を用いて、従来、別々の実験で測定してきた  $\beta$  半減期と  $Q_{\beta}$  を同時に決定できることも明らかとなった。

## 3. 結果および考察

以上から得られた結果を Table 1 に Audi らのシステムティクス値<sup>8)</sup>および 3 個の理論計算による予測値<sup>9,10)</sup>とともに示す。これらの核種では、Audi らのシステムティクスは、誤差は大きいがほぼ実験値を再現している。一方、理論計算による値もその精度を 500keV 程度と考えればほぼ実験値と一致していると考えられる。しかし、この領域で十分な予測性をもつか否かは、10 核種程度の系統的な測定が必要である。

本実験から、今まで  $\beta$  半減期しか決定できなかった新核種について、 $Q_{\beta}$  も決定することが可能となった。 $Q_{\beta}$  と半減期の予測値と実験値とを比較することは、理論の検証になり興味深い。今回得られた結果のうち、 $^{166}\text{Tb}$  と  $^{161}\text{Sm}$  について実験値と予測値<sup>10-12)</sup>の比較を Fig.2 に示す。いずれの理論計算も、 $Q_{\beta}$  として今回の実験値を採用したとしても、 $\beta$  半減期を長めに予測していることがわかる。この傾向は他の核種においても同様に見られた。これらの事実は、今後の理論計算の精密化に貢献すると考えられる。

$Q_{\beta}$  を系統的に測定することによってどのようなことがわかるであろうか。我々は、KUR-ISOL で質量数 150 近傍の核種につき系統的に測定し、2 中性子分離エネルギーの系統性を調べた(Fig.3)。この図からわかるように、La 同位体において、Audi らのシステムティクスから大きくずれる傾向が見られる。このことは、この領域において核的な特異性があることを示唆していると考えられる。実際、 $^{149}\text{La}$  では 8 重極変形の実験的事実も報告されている<sup>13)</sup>。また、Dy の第 1 励起状態  $2^+$  のエネルギーの系統性が、質量数 168 で小さくなるという特異性がある<sup>5)</sup>。この領域をさらに測定することによって、 $Q_{\beta}$  からこの特異性を示唆する結果が得られる可能性がある。中性子過剰核な希土類核は生成反応に限られるため、予想される半減期が長いにもかかわらず研究が進んでいない分野である。Cm 等

の自発核分裂によるインビーム核分光の手法で研究が進んでいるが、崩壊核分光はほとんど行われていない。CfやCmをターゲットとしてISOL実験に利用すれば、研究対象領域が一段と広げられる。

#### 4. 結論

全吸収検出器とオンライン同位体分離装置を組み合わせ、質量数160近傍の新同位元素を含む5個の中性子過剰な希土類原子核の $Q_{\beta}$ を測定した。 $\beta$ 半減期と $Q_{\beta}$ を決定したことによって、今後の理論的予測の精密化に貢献すると期待できる。

#### References

1. M. Asai et al., J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1135 (1996).
2. S. Ichikawa et al., Phys. Rev. **C58**, 1329 (1998).
3. S. Ichikawa et al., Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **A374**, 330 (1996).
4. S. Ichikawa et al., Proc of the 2<sup>nd</sup> Int. Conf. on Fission and Properties of Neutron-rich Nuclei, St. Andrews, Scotland, June 28-july 3, 1999. (World Scientific, Singapore 2000) p. 203.
5. M. Asai et al., Phys. Rev. **C59** 3060 (1999).
6. M. Shibata et al., Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **A459**, 581 (2001).
7. M. Shibata et al., J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 1401 (2002).
8. G. Audi and A. H. Wapstra, Nucl. Phys. **A595**, 409 (1995).
9. H. Koura, M. Uno, T. Tachibana, and M. Yamada, RIKEN-AF-NP-394.
10. P. Möller, J.R. Nix and W.J. Swiatecki, At. Data Nucl. Data Tables **59**, 185 (1995).
11. This figure for <sup>166</sup>Tb is taken from Ref. 1. (References are therein, e.g. A. Staudt, E. Bender, K. Muto and H. V. Klapdor-Kleingrothaus, At. Data and Nucl. Data Tables **44**, 79 (1990).)
12. T. Tachibana, private communication.
13. A. Syntfeld *et al.*, Nucl. Phys. A **710** (3-4) 221 (2002).

Table 1. Comparison of the deduced  $Q_{\beta}$ s with the systematics and theoretical ones.

Nuclei	Half-life(s)	Present	$Q_{\beta}$ -value (MeV)			
			Systematics Audi et al. <sup>8)</sup>	KUTY <sup>9)</sup>	Theoretical FRDM <sup>10)</sup> FRLDM <sup>10)</sup>	
158Pm	4.8(5)	6.12(~10)	6.243(408)	6.27	6.58	6.63
159Pm	1.47(15)	5.66(~10)	5.524(585)	5.08	5.60	5.66
159Sm	11.37(15)	3.84(~10)	3.834(298)	3.45	3.53	3.62
161Sm	4.8(8)	4.92(~10)	4.797(585)	4.43	4.57	4.65
166Tb	25.6(22)	4.83(~10)	4.887(298)	4.86	4.96	4.97

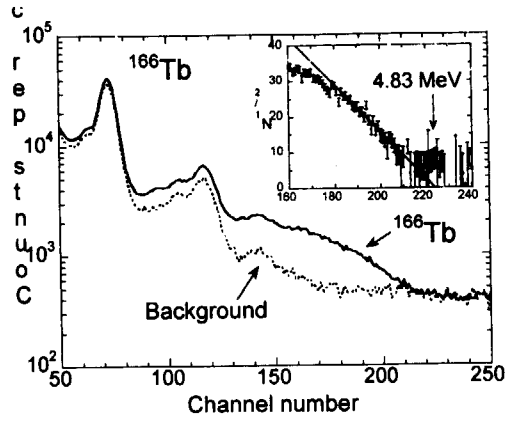


Fig.1 Total absorption spectrum of  $^{166}\text{Tb}$  and its square root plot (inset).

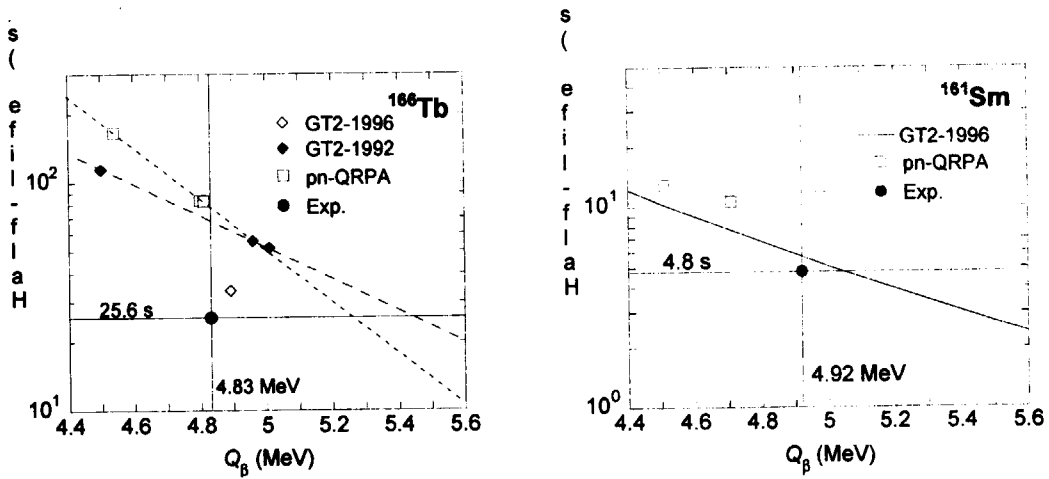


Fig.2. Comparisons of experimental half-lives and  $Q_\beta$ s and the theoretical ones for  $^{166}\text{Tb}$  and  $^{161}\text{Sm}$ .

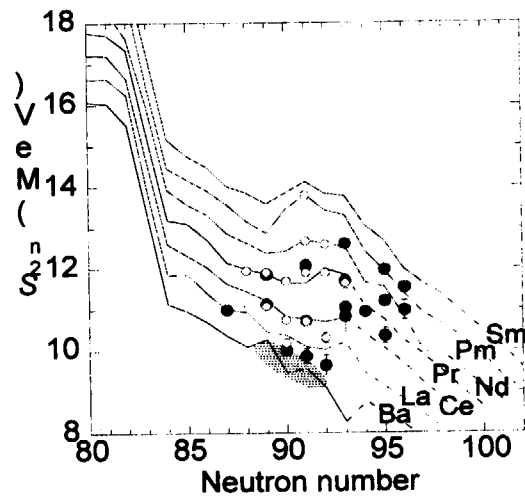


Fig.3 Systematic behavior of two neutron separation energy ( $S_{2n}$ ).



### 3.3.8 Rf(Z=104) および同族元素 (Zr, Hf) の オンライン等温ガスクロマトグラフ分離

## On-line Isothermal Gas Chromatography of Rf (Z = 104) and its Homologs (Zr, Hf)

金子哲也<sup>1</sup>, 塚田和明<sup>2</sup>, 浅井雅人<sup>2</sup>, 秋山和彦<sup>2</sup>, 豊嶋厚史<sup>3</sup>, 石津秀樹<sup>1</sup>,  
小野佐和子<sup>1</sup>, 平井利之<sup>1</sup>, 後藤真一<sup>1</sup>, 市川進一<sup>2</sup>, 永目諭一郎<sup>2</sup>, 工藤久昭<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>新潟大理, <sup>2</sup>原研先端研, <sup>3</sup>大阪大院理)

T. Kaneko<sup>1</sup>, K. Tsukada<sup>2</sup>, M. Asai<sup>2</sup>, K. Akiyama<sup>2</sup>, A. Toyoshima<sup>3</sup>, H. Ishizu<sup>1</sup>, S.  
Ono<sup>1</sup>, T. Hirai<sup>1</sup>, S. Goto<sup>1</sup>, S. Ichikawa<sup>2</sup>, Y. Nagame<sup>2</sup> and H. Kudo<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Chemistry, Niigata Univ.

<sup>2</sup>Advanced Science Research Center, JAERI

<sup>3</sup>Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka Univ.

#### 1. はじめに

最初の超アクチノイド元素であるラザホージウム (Rf, Z = 104) は、周期表上では4族に属し、そのハロゲン化物は同族の Zr, Hf と同様に高い揮発性を持つとされている。Rf 塩化物は、周期表上からの予想では他の2元素に比べて低い揮発性を持つと予想される ( $Zr \approx Hf \geq Rf$ ) が、Kadkhodayan らによれば、これらの塩化物の揮発性について  $Zr \approx Rf \geq Hf$  であり、Rf が、Zr と同様な揮発性をもつのは相対論効果に起因するとしている [1]。しかしながら、マクロ量では Zr, Hf 塩化物の熱力学的関数にはほとんど差がなく、報告されたトレーサー量での揮発性の違いについては疑問が残る。また、各元素について、それぞれ単独に実験がなされたため、酸素等の実験条件が異なる可能性がある。そこで、我々は新たにオンライン等温ガスクロマトグラフ装置を開発し、Zr, Hf および Rf について、これらの短寿命核種を同時に生成して実験をおこない、揮発性の差異について検討した。

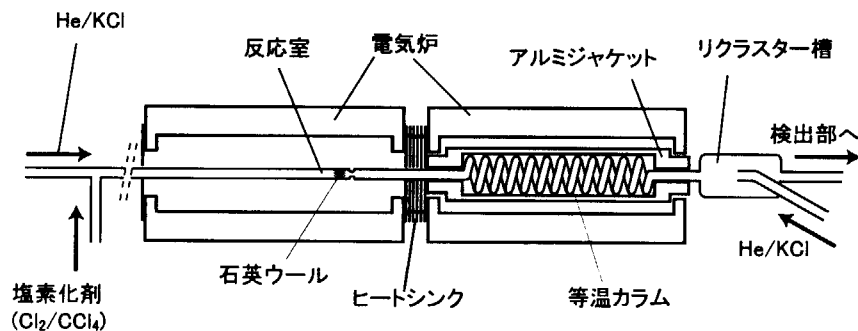


図1 オンライン等温ガスクロマトグラフ装置の概略図

## 2. 実験

実験は、日本原子力研究所タンデム加速器施設にて行った。Zr, Hf および Rf の同位体は、Ge ( $^{18}\text{O}$ , xn)  $^{85}\text{Zr}$  ( $T_{1/2} = 7.9$  min), Gd ( $^{18}\text{O}$ , xn)  $^{169}\text{Hf}$  ( $T_{1/2} = 3.25$  min) および  $^{248}\text{Cm}$  ( $^{18}\text{O}$ , 5n)  $^{261}\text{Rf}$  ( $T_{1/2} = 78$  s) 反応で生成したものをを用いた。生成された核反応生成物は、核反応槽から He/KCl ガスジェット搬送法によって化学分離装置へと連続的に供される。He 流量は  $1.2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ , KCl オープン温度は  $640^\circ\text{C}$  とした。4 族塩化物の吸着挙動に大きく影響を与えると考えられる酸素濃度は、十分低い 30 ppm 以下に留めた [2]。

用いた分離装置を図 1 に示す。装置は反応室、等温カラムおよびリクスター槽からなる。カラムは石英製であり、等温部は内径  $3 \text{ mm}\phi \times 1500 \text{ mm}$  のスパイラル状とした。反応室内に KCl エアロゾルと共に導入された核反応生成物は、塩素化剤と反応し、塩化物を生成する。反応室温度は、あらかじめオフラインで決定した  $1000^\circ\text{C}$  である。また、塩素化剤としては、 $\text{Cl}_2/\text{CCl}_4$  混合ガスを用いた。流量は  $150 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$  である。生成した揮発性化合物は、カラム温度と、揮発性化合物の吸着エンタルピーや吸着エントロピー等から決まる溶出時間を経たのち、リクスター槽に運ばれる。リクスター槽に運ばれた揮発性化合物は、He 流量が  $2.0 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  である He/KCl ガスジェット搬送法によって検出部へと運ばれ、核種の同定が行われる。Zr, Hf 同位体については、高純度ゲルマニウム半導体検出器による  $\gamma$  線スペクトロメトリーを用い、Rf については  $\alpha$  線連続測定装置 (MANON [3]) を用いて測定を行った。

## 3. 結果と考察

等温カラム温度が  $400^\circ\text{C}$  のときに得られた  $\alpha$  線スペクトルを図 2 に示す。このときの照射時間は 25000 秒である。8.00 - 8.40 MeV の範囲の  $\alpha$  線を、 $^{261}\text{Rf}$  およびその娘核種である  $^{257}\text{No}$  に帰属した。標的や標的周辺構造物の不純物である Pb 由来の  $^{211}\text{Bi}$  や  $^{211\text{m}}, ^{212\text{m}}\text{Po}$  が検出されているが、核反応の副生成物として生成が予想されるアクチノイドについては、塩化物の揮発性が非常に低いために除かれていることがわかる。

一方、Zr, Hf および Rf について、得られた等温カラム温度-収率曲線を図 3 に示す。曲線は Zvára による理想直線クロマトグラフモデルをもとにしたモンテカルロ計算による [5]。

各曲線はともに、約  $300^\circ\text{C}$  周辺から急速に立ち上がり、 $350^\circ\text{C}$  手前で最大となり、以降は一定となった。3 曲線はともに文献 [1, 4] と比べて、高い吸着挙動を示した。系内の酸素濃度は十分に低く、また反応ガスに用いた  $\text{CCl}_4$  が酸素ゲッターとして機能することから、エアロゾルに用いた KCl によるカラム表面への影響だと考えられる [6]。そのため、絶対値としては比較することができない。しかしながら、同一表面上に対しては、相対的な揮発性の比較は可能である。

Zr, Hf についてみると、塩化物の昇華エンタルピーから予想されるように、非常によく似た挙

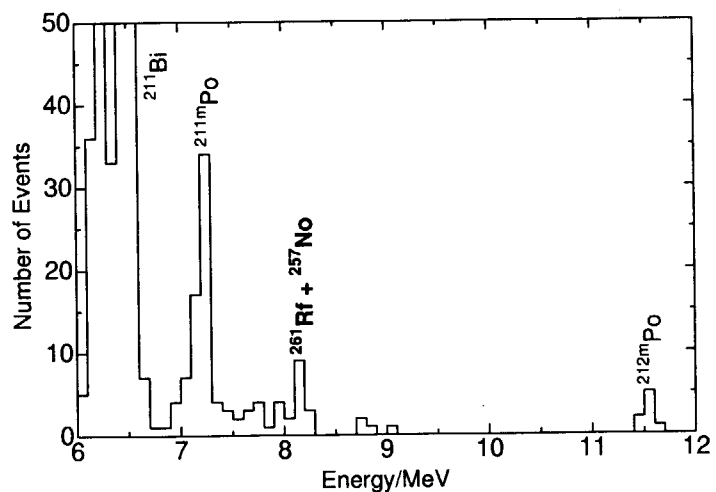


図 2 オンライン等温クロマトグラフ分離して得られた  $\alpha$  線スペクトル。等温カラム温度  $400^\circ\text{C}$ 。実験時間 25000 秒

動を示し、Domanov らによる熱クロマトグラフ法による結果 [2] と一致した。また、Rf について、Zr や Hf と同様な挙動をとることがわかった。これは周期表上からの予想と異なり、今後、詳しい検討が必要である。

## References

- [1] B. Kadkhodayan *et al.*, *Radiochim. Acta*, **72**, 169 (1996)  
 [2] V. P. Domanov *et al.*, *Radiokhimiya*, **31**, 19 (1989)  
 [3] H. Haba *et al.*, *J. Radiochim. Sci.*, **3**, 85 (2002)  
 [4] A. Türler *et al.*, *J. Alloys. Comp.*, **271-273**, 287 (1998)  
 [5] I. Zvara, *Radiochim. Acta*, **38**, 95 (1985)  
 [6] B. Kadkhodayan, Ph. D. Thesis, University of California, Berkeley (1993), Lawrence Berkerey Laboratory Report #33961, Nuclear Science Division (1993)

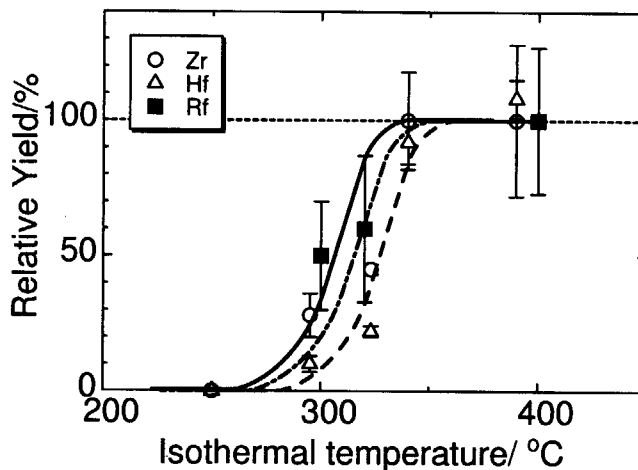


図3 等温カラム温度に対する収率変化 (○:  $^{85}\text{Zr}$ ,  $\Delta$ :  $^{169}\text{Hf}$ ,  $\blacksquare$ :  $^{261}\text{Rf}$ )。反応室温度  $1000^\circ\text{C}$ , He/KCl 流量  $1.2\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ ,  $\text{Cl}_2/\text{CCl}_4$   $150\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$



### 3.4 物性・材料関連

#### 3.4.1 Fe-Ni インバー合金の高エネルギー重イオン照射による磁性の改質

#### MODIFICATION OF MAGNETIC PROPERTIES IN Fe-Ni INVAR ALLOYS BY HIGH ENERGY HEAVY ION IRRADIATION

小松征史<sup>1,2</sup>, 岩瀬彰宏<sup>1</sup>, 石川法人<sup>1</sup>, 知見康弘<sup>1</sup>, 濱谷祐多郎<sup>2</sup>, 小野文久<sup>2</sup>  
S. KOMATSU<sup>1,2</sup>, A. IWASE<sup>1</sup>, N. ISHIKAWA<sup>1</sup>, Y. CHIMI<sup>1</sup>, Y. HAMATANI<sup>2</sup>, F. ONO<sup>2</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部; <sup>2</sup>岡山大学理学部

<sup>1</sup>Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI); <sup>2</sup>Department of Physics, Faculty of Science, Okayama University

1897年にGuillaumeによって発見されたインバー合金[1]は、室温付近で体積膨張率が極端に小さく、現在では精密計器類などに広く利用されている。そのインバー合金の中で最もポピュラーな fcc 相の強磁性体 FeNi 合金は、非常に小さな体積膨張率[2]の他に飽和磁化の大きな圧力依存性[3]、キュリー温度の大きな圧力依存性[4]など多くの物理的特徴を持っている。FeNi インバー合金に高エネルギー重イオン照射を行うと、局所的に磁性が改質され部分的なキュリー温度の上昇が観測された[5,6]。そこで我々はイオン種と照射量を固定しエネルギーだけを変えることにより、照射効果のエネルギー依存性を調べた。

試料はFeとNiを7:3の割合で混合させ炉で溶解し、180 $\mu$ mに圧延し5mm $\times$ 5mmに切り出した後、1000 $^{\circ}$ Cで3時間アニールし、水中にてクエンチしたものを使用した。

照射はタンデム加速器で<sup>136</sup>Xe<sup>14+</sup>を200MeV, 150MeV, 80MeV, 50MeVの4種類のエネルギーに分け、すべて室温で各々 $2 \times 10^{13}$ cm<sup>2</sup>の照射を行い、その後AC磁化率測定によりキュリー温度の変化を調べた。イオンの飛程(レンジ)よりも試料の厚さの方が長いので、照射効果が起こらない部分が必ず存在する。その部分を基準にしてキュリー温度の変化を比較した。

照射後のAC磁化率測定の結果により図1のような結果が得られた。キュリー温度の上昇分 $\Delta T_c$ は異なるエネルギーで照射したにもかかわらずほとんど違いが見られなかったが、試料全体の磁化率と照射により誘起したキュリー温度の高い部分の磁化率による信号強度との比に大きな違いが見られた(図2)。このことから照射によって試料内では何らかの形で磁性が改質されるが、照射量が一定の場合にはキュリー温度の増加が照射イオンのエネルギーにはよらないことがわかる。一方、改質された領域の信号強度はエネルギーに依存して大きくなった。つまり改質領域はレンジに比例していると解釈できる。入射イオンのレンジが長い分、電子励起の効果が広範囲におよび磁性の改質される領域も広い範囲になり、信号強度が増したと考えることができる。一方、弾性的弾き出しの効果については、電子励起の効果に比べ与えるエネルギーが小さいが、何らかの形で影響を与えている可能性もある。しかし今回の実験では入射イオンのレンジ近傍の試料深さでの弾き出しが顕著であるために、弾き出しの効果であればレンジによらないと考えられる。弾き出し効果が関係するかどうかについては、試料の厚さよりもレンジの長い、より高エネルギーの重イオンを照射して電子励起効果だけの条件をつくることで確かめることができる。今後はそのような実験をすることで磁性の改質のメカニズムを明らかにしていきたい。

#### References

- [1] C.E. Guillaume, *Compt. Rend.* **125** (1897) 235.
- [2] P. Chevenard, *Rev. de Met.* **25** (1897) 14.
- [3] J.S. Kouvel and R.H. Wilson, *J.appl., Phys.* **32** (1961) 435.
- [4] J.M. Leger, C. Loriers-Snsse, B. Voda, *Phys.Rev. B* **6** (1972) 4250.

- [5] F. Ono, Y. Hamatani, Y. Mukumoto, S. Komatsu, N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, T. Kambara, C. Müller, R. Neumann, Nucl. Instr. and Meth. B **206** (2003) 295-298.  
 [6] A. Iwase, Y. Hamatani, Y. Mukumoto, N. Ishikawa, Y. Chimi, T. Kambara, C. Müller, R. Neumann, F. Ono, Nucl. Instr. and Meth. B (2003), in press.

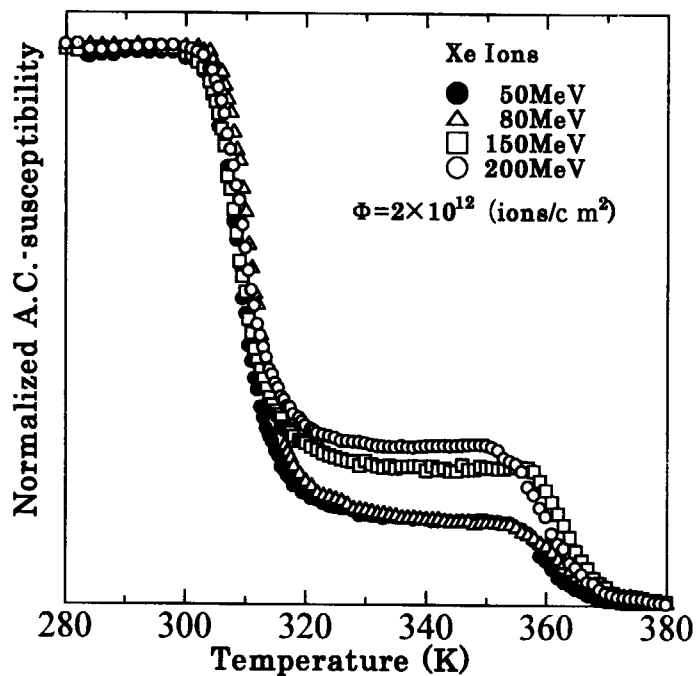


図1 照射後の交流磁化率測定結果

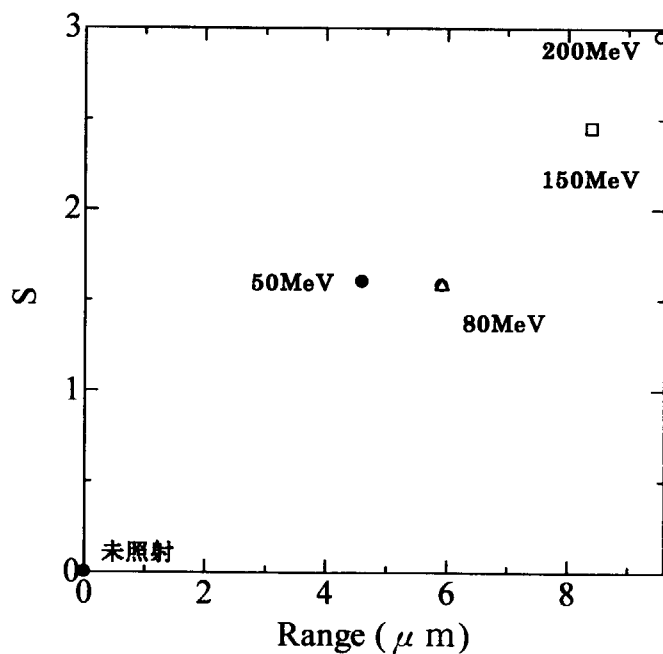


図2 Rangeと信号強度Sの関係





### 3.4.2 高エネルギーイオン照射によるビスマスの電気的特性の改質 MODIFICATION OF ELECTRICAL PROPERTIES OF BISMUTH BY ENERGETIC ION IRRADIATION

知見康弘, 岩瀬彰宏, 石川法人

Y. CHIMI, A. IWASE, and N. ISHIKAWA

日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部

Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI)

アモルファスビスマス薄膜は $\sim 6$  K 以下で超伝導転移を起こし、また 10–20 K で結晶化を起こすことが知られており[1]、これらは膜厚に強く依存している[2–6]。例えば、膜厚が 600 Å 以上になると、結晶化温度は $\sim 4$  K 以下に低下する[4,6]。このように結晶化温度が低いために、アモルファスビスマス薄膜は、これまで液体ヘリウム温度に保った基板上に蒸着する方法によってのみ作製可能であった[1–6]。さらに、ビスマスは融点が 544.6 K と低いために、高エネルギーイオン照射に対する感受性が高いことが期待される。Dufour ら[7]は、ビスマスにおける高エネルギー重イオン照射効果を電気抵抗測定により調べ、欠陥生成過程について熱スパイクモデルを用いて議論している。彼らは、ビスマス中の照射によって誘起されるアモルファス化の証拠となる超伝導転移を検出しようとしたが、照射温度が再結晶化温度より高かったために成功していない。我々の知る限り、低温での照射によってビスマス中にアモルファス化を誘起した例はこれまでにない。そこで、我々はビスマス薄膜における照射誘起アモルファス化の証拠となる超伝導転移及びアモルファス領域の再結晶化を電気抵抗の変化から検出しようと試みた。

多結晶ビスマス薄膜 (膜厚 330 Å) は、サファイア基板上に室温、 $5 \times 10^{-8}$  Torr 以下の真空中で蒸着され、通常の四端子法での電気抵抗測定ができるように、マスクを用いて作製された。試料には、東海研タンデム加速器において、200 MeV の  $^{197}\text{Au}$  イオンが 7.4 K 以下の低温で照射された。適当な照射量のイオンを照射した後に、電気抵抗のアニーリング挙動を観測するために、試料を 35 K まで等速で昇温し、引き続き 6.9 K まで等速で降温しながら、電気抵抗を測定した。低温照射及びアニーリング実験は、同じ試料を用いて繰り返し、合計 8 回行なった。

アニーリング実験における電気抵抗率 ( $\rho$ ) の温度依存性を図 1 に示す。 $\Phi_i$  は  $i$  番目のアニーリング実験をする直前の低温照射での照射量である。図 1 からわかるように、3 番目から 8 番目のアニーリング実験では、アニーリング前後で  $\rho$  にヒステリシスが生じ、アニーリング後の  $\rho$  がより大きくなった。照射によって  $\rho$  は増加しているのに、欠陥の熱回復によるものとは異なると考えられる。図 2 に、4 番目のアニーリング実験の結果を拡大して示す。昇温過程では、 $\rho$  は 20 K 付近で急激に増加するのに対し、降温過程では、滑らかに変化している。このような不可逆挙動は、1 番目及び 2 番目のアニーリング実験では観測されておらず、一種のしきい照射量が存在する可能性がある。各アニーリング実験での、温度  $T$  における昇温過程と降温過程での  $\rho$  の差  $\Delta\rho_a(T)$  を、6.9 K での差の絶対値  $|\Delta\rho_{6.9}|$  で規格化すると、図 3 のようになる。図 3 には、4 番目、5 番目、6 番目及び 8 番目のアニーリング実験について示した。これらは同程度の照射量 ( $4.0\text{--}4.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) のものであるが、異

なる $\rho$ にもかかわらず、いずれも同様のアニーリング挙動を示すことがわかる。低温基板に蒸着して作製された膜厚 300–500 Å のアモルファスビスマス薄膜において、10–20 K でアモルファス領域の結晶化による急激な抵抗増加が観測されている[1,4–6]ため、今回の結果は、高エネルギーイオン照射によってビスマス中にアモルファス領域が導入され、それが再結晶化したことを示唆している。不運にも、到達最低温度が 6.9 K であったため、超伝導転移は観測できなかった。しかし、照射中の試料温度が 7.4 K 以下に保たれ、かつ試料の膜厚が 330 Å であったため、再結晶化に伴う抵抗変化が観測できたものと思われる。現在、到達温度を超伝導転移温度である  $\sim 6$  K 以下に下げた照射を行なう実験を計画中である。また、照射によるアモルファス化が電子励起効果であれば、円柱状の領域にアモルファス化が起こり、その領域だけが超伝導転移を示す可能性がある。電子励起効果かどうかを明らかにするためには、イオン種を変えた系統的な実験を行なう必要がある。

### References

- [1] W. Buckel, R. Hilsch, Z. Phys. **138** (1954) 109.
- [2] D.G. Naugle, R.E. Glover, Phys. Lett. **28A** (1969) 611; D.G. Naugle, R.E. Glover III, W. Moormann, Physica **55** (1971) 250.
- [3] M. Strongin, R.S. Thompson, O.F. Kammerer, J.E. Crow, Phys. Rev. B **1** (1970) 1078.
- [4] Yu.F. Komnik, B.I. Belevtsev, L.A. Yatsuk, Sov. Phys. –JETP **36** (1973) 1177.
- [5] T. Shigi, Y. Kawate, T. Yotsuya, in: K.D. Timmerhaus, W.J. O'Sullivan, E.F. Hammel (Eds.), Low Temperature Physics – LT13, Vol. 3, Plenum Press, New York, 1974, p. 633.
- [6] T. Hamada, K. Yamakawa, F.E. Fujita, J. Phys. F: Metal Phys. **11** (1981) 657.
- [7] C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J.P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier, M. Toulemonde, J. Phys.: Condens. Matter **5** (1993) 4573.

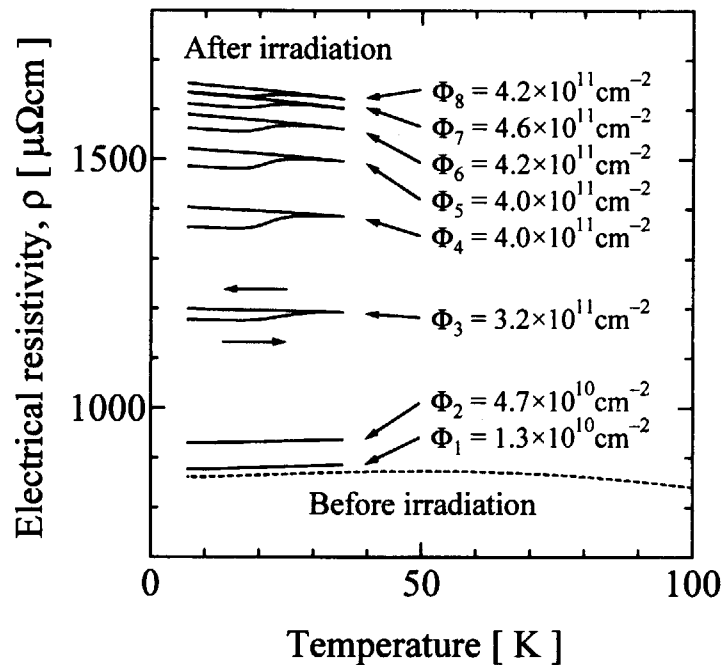


図 1. 照射後アニーリング実験における電気抵抗率 ( $\rho$ ) の温度依存性。  
 $\Phi_i$  は  $i$  番目のアニーリング実験をする直前の低温照射での照射量である。

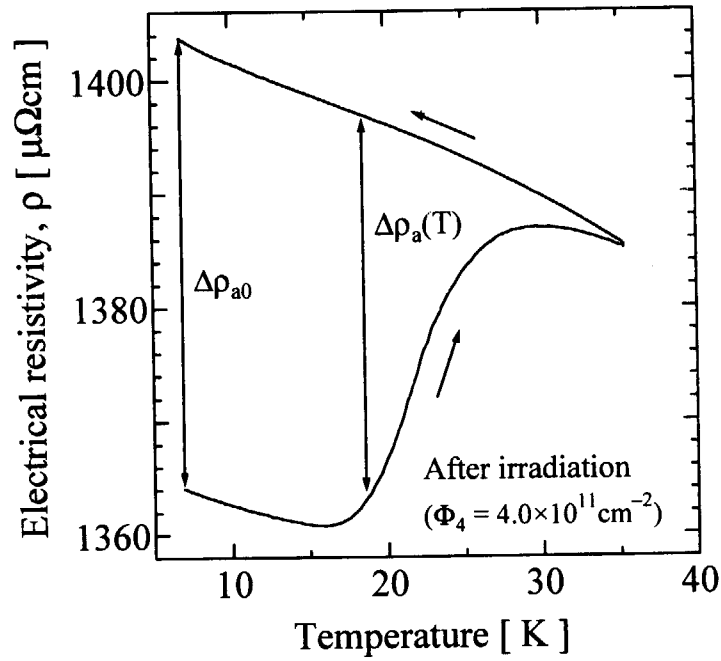


図2. アニール挙動の一例

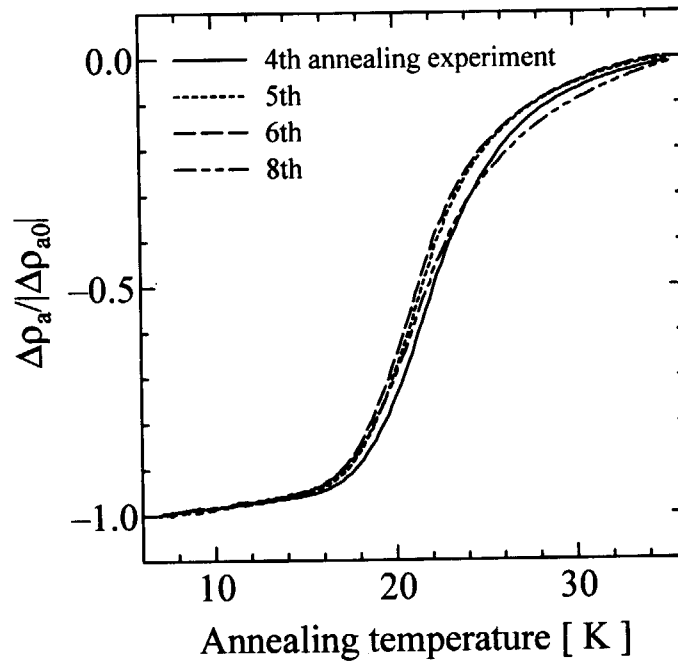


図3. 規格化したアニール挙動。4番目、5番目、6番目及び8番目のアニール実験について示した。



### 3.4.3 高エネルギー重イオン照射した白金における欠陥生成と照射アニーリング

## DEFECT PRODUCTION AND RADIATION ANNEALING IN PLATINUM IRRADIATED WITH HIGH-ENERGY HEAVY IONS

知見康弘, 岩瀬彰宏, 岩田忠夫

Y. CHIMI, A. IWASE, and T. IWATA

日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部

Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research  
Institute (JAERI)

高エネルギー重イオン照射した金属においては、弾性的相互作用だけでなく電子励起によっても原子変位が引き起こされることが知られている[1]。電子励起による過程では、電子系を励起したエネルギーの一部が、電子-格子相互作用やクーロン反発によって格子系に伝達されると考えられているが、そのメカニズムは明らかでない。メカニズム解明のためには、電子励起効果を全照射効果から抽出する必要がある。金属における照射効果は、照射で導入される欠陥の熱的回復挙動を調べる実験や、欠陥の生成率を調べる実験によって研究されることが多い。欠陥回復挙動からは、欠陥の熱的安定性の情報が得られ、欠陥生成率からは、照射中の欠陥生成・消滅のカイネティクスに関する情報が得られる。これらの情報は、互いに強く関連したものになっている。本研究では、高エネルギー重イオン照射した白金における電子励起効果を、欠陥生成率のデータを解析することによって抽出する。また、欠陥生成率と欠陥回復挙動の結果の関係についても議論を行なう[2]。

試料は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  でコーティングされたアルミ基板上に  $2 \times 10^{-7}$  Torr 以下の真空中で蒸着された、多結晶白金薄膜(膜厚~200 nm)を用いた。イオン照射は~10 K 以下の低温で行なわれ、低エネルギーイオン (0.6-2.0 MeV  $^1\text{H}$ - $^{40}\text{Ar}$  イオン) については東海研の 2 MV Van de Graaff 加速器を、高エネルギーイオン (84-120 MeV  $^{12}\text{C}$ - $^{127}\text{I}$  イオン) については東海研のタンデム加速器を用いて行なった。試料の電気抵抗は、四端子法を用いて、適当なイオン照射量毎に、5-7 K でその場測定した。照射による電気抵抗率の変化 ( $\Delta\rho$ ) は、金属では導入される欠陥濃度 ( $C$ ) に比例する ( $\Delta\rho = \rho_F C$ ,  $\rho_F$  は欠陥の電気抵抗寄与率) と考えられるため、 $\Delta\rho$  の照射量依存性は、欠陥の蓄積挙動を示すことになる。照射後、試料を等速 (1.4 deg/min) で昇温し、欠陥の回復挙動を観測した。

低エネルギーイオン照射における欠陥蓄積挙動を見てみると、 $d(\Delta\rho)/d\Phi$  が 1 成分の指数関数的に減少していくことがわかる。この場合、従来からの欠陥生成・消滅を記述するための速度式[3]が適用できる。一方、高エネルギーイオン照射では、図 1 に示すように、 $d(\Delta\rho)/d\Phi$  が 2 成分の指数関数から成ることが分かる。これは、低エネルギーイオン照射の場合とは異なる欠陥消滅過程が含まれていることを示している。この現象を記述するために、付加的な選択的照射アニーリングのモデル、

$$\frac{dC_1}{d\Phi} = \sigma_{d1}(1 - 2v_0^*C) - \sigma_{r1}C_1 \quad (1)$$

$$\frac{dC_2}{d\Phi} = \sigma_{d2}(1 - 2v_0^*C) \quad (2)$$

$$C = C_1 + C_2 \quad (3)$$

が提案されている[4]。ここで、 $v_0^*$ は subthreshold 効果を含んだ実効的な再結合体積であり、低エネルギーイオン照射で見られる欠陥消滅過程で、欠陥に対する選択性はないとしている。 $C_1$  及び  $C_2$  はそれぞれ付加的な照射アニーリングで消される欠陥（第1成分の欠陥）と消されない欠陥（第2成分の欠陥）の濃度である。また、 $\sigma_{d1}$  及び  $\sigma_{d2}$  はそれぞれ第1成分及び第2成分の欠陥生成断面積、 $\sigma_{r1}$  は第1成分の欠陥の付加的な照射アニーリング断面積である。このモデルでは、第1成分の欠陥は、入射粒子が引き起こす結晶格子の擾乱に弱く消滅しやすいと仮定しているため、同様に熱的な擾乱にも弱いと考えられる。従って、第1成分の欠陥はフレンケル対のような単純な構造の欠陥から成ると思われる。一方、第2成分の欠陥は、格子の擾乱には比較的強いと仮定しているため、第1成分の欠陥より複雑な構造を持つと思われる。また、付加的な照射アニーリングは、高エネルギーイオン照射の場合にのみ現れるので、電子励起に起因する現象である可能性が高い。(1)-(3)式の解は、 $\sigma_{r1} \gg 2v_0^* \sigma_{d1}$  ( $i=1,2$ )を仮定すると近似でき、

$$\Delta\rho \approx \frac{\rho_F \sigma_{d1}}{(\sigma_{r1} + 2v_0^* \sigma_{d1}) - 2v_0^* \sigma_{d2}} \left\{ 1 - \exp(-(\sigma_{r1} + 2v_0^* \sigma_{d1}) \Phi) \right\} \\ + \rho_F \left\{ \frac{1}{2v_0^*} - \frac{\sigma_{d1}}{(\sigma_{r1} + 2v_0^* \sigma_{d1}) - 2v_0^* \sigma_{d2}} \right\} \left\{ 1 - \exp(-2v_0^* \sigma_{d2} \Phi) \right\} \quad (4)$$

となり、データフィッティングにより、各パラメータが求められる。その結果、今回行った高エネルギーイオン照射における欠陥生成は、全て弾性的相互作用に起因していることがわかった。また、ここで得られた $\sigma_{r1}$ について注目してみると、図2のように電子的阻止能( $S_e$ )と非常に良く相関していることがわかる。 $\sigma_{r1}$ は $S_e^2$ に比例して非線形に増加しており、このことは付加的な照射アニーリングが電子励起に起因していることを示唆している。

白金における照射欠陥の熱的回復挙動から、高エネルギーイオン ( $^{35}\text{Cl}$ ,  $^{127}\text{I}$ ) 照射では回復ステージ I がほとんど消えていることがわかる[5]。各高エネルギーイオン照射での欠陥蓄積挙動の解析から、第1成分の欠陥による照射終了時の抵抗率増加量 ( $\Delta\rho_{01}$ ) が、全抵抗率増加量 ( $\Delta\rho_0$ ) に占める割合 ( $\Delta\rho_{01}/\Delta\rho_0$ ) が求められる。付加的な照射アニーリングが第1成分の欠陥に対してのみ起こるため、第1成分の欠陥は熱的にも不安定で、第2成分の欠陥より低温で消滅すると仮定できる。このような仮定をすると、欠陥回復挙動及び $\Delta\rho_{01}/\Delta\rho_0$ から、第1成分の欠陥が全て回復する温度 ( $\Theta_1$ ) を見積もることができる。図3には、1.30 MeV  $^{14}\text{N}$  と 84 MeV  $^{12}\text{C}$  イオン照射における欠陥回復挙動を示す。図からわかるように、84 MeV  $^{12}\text{C}$  イオン照射の場合、 $\Theta_1$ は27 Kとなる。両イオン照射での一次弾き出し原子 (PKA) の平均エネルギーがほぼ同じであるので、弾性的相互作用で生成された欠陥の回復挙動も同じになるはずであるが、 $\sim\Theta_1$ 以下で異なる挙動を示している。これは、84 MeV  $^{12}\text{C}$  イオンによる電子励起が $\sim 27$  Kの温度に相当するような格子の擾乱を引き起こしたことを示唆している。同様に他の高エネルギーイオン照射について見積もられた $\Theta_1$ は、回復ステージ I の温度を超えており、 $^{35}\text{Cl}$  及び  $^{127}\text{I}$  イオン照射で回復ステージ I がほとんど消えていることが説明できる。

## References

- [1] 例えば、A. Iwase, T. Iwata, Nucl. Instr. and Meth. B **90** (1994) 322 など。
- [2] Y. Chimi, A. Iwase, T. Iwata, Nucl. Instr. and Meth. B (2003), in press.
- [3] H.J. Wollenberger, in: A. Seeger, D. Schumacher, W. Schilling, J. Diehl (Eds.), Vacancies and Interstitials in Metals, North-Holland, Amsterdam, 1970, p. 215.

- [4] T. Iwata, A. Iwase, Radiat. Eff. Defect. Solids **113** (1990) 135.  
 [5] A. Iwase, T. Iwata, T. Nihira, S. Sasaki, Mater. Sci. Forum 97-99 (1992) 605.

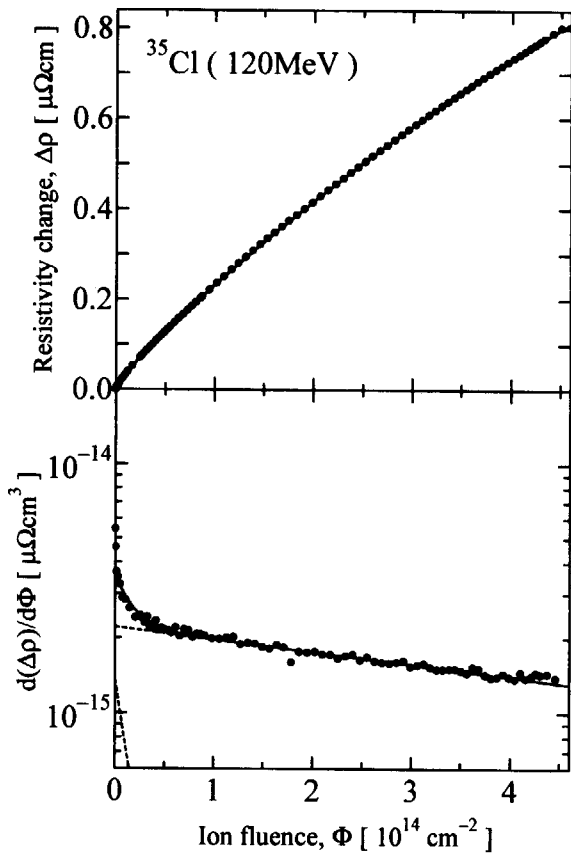


図1 高エネルギーイオン照射における欠陥蓄積挙動

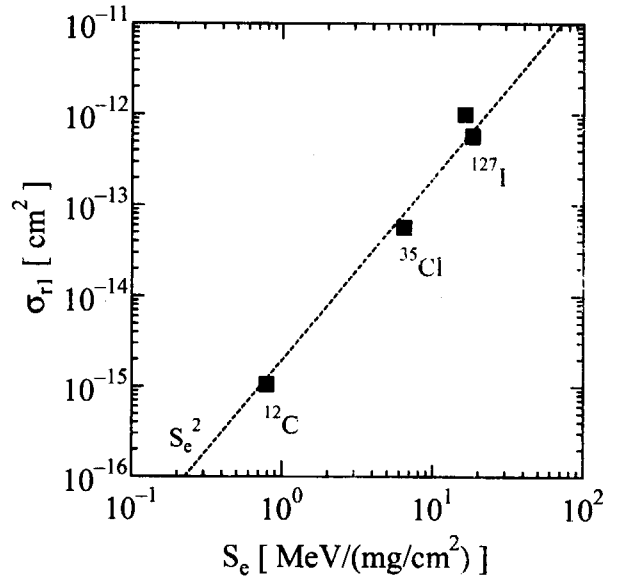


図2 追加的な照射アニーリング断面積 ( $\sigma_{ri}$ ) の電子的阻止能 ( $S_e$ ) 依存性

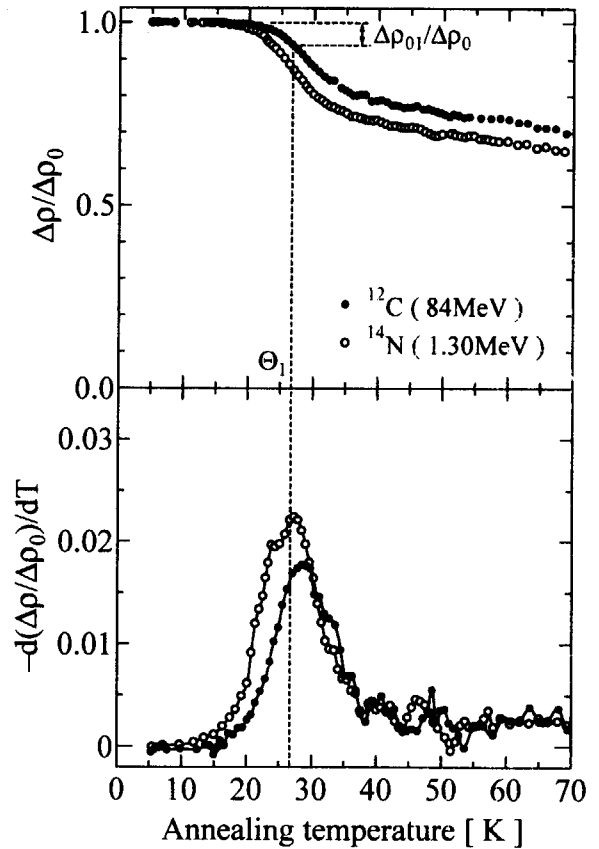


図3 1.30 MeV  $^{14}\text{N}$  と 84 MeV  $^{12}\text{C}$  イオン照射における欠陥回復挙動



### 3.4.4 炭素繊維の力学特性に及ぼすイオン照射の影響

#### EFFECTS OF ION IRRADIATION ON MECHANICAL PROPERTIES OF CARBON FIBERS

車田 亮<sup>1)</sup>、今村好男<sup>1)</sup>、奥 達雄<sup>2)</sup>、石原正博<sup>3)</sup>、馬場信一<sup>3)</sup>、相原 純<sup>3)</sup>  
A. KURUMADA<sup>1)</sup>, Y. IMAMURA<sup>1)</sup>, T. OKU<sup>2)</sup>, M. ISHIHARA<sup>3)</sup>, S. BABA<sup>3)</sup>, J. AIHARA<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>茨城大学工学部：〒316-8511 茨城県日立市中成沢町 4-12-1

<sup>2)</sup>放送大学茨城学習センター：〒310-0056 茨城県水戸市文京 2-1-1

<sup>3)</sup>日本原子力研究所大洗研究所核熱利用研究部：〒311-1394 茨城県大洗町成田町 3607

<sup>1)</sup>Faculty of Engineering, Ibaraki University, 4-12-1, Nakanarusawa, Hitachi, Ibaraki, 316-8511

<sup>2)</sup>Ibaraki Study Center, The University of the Air, 2-1-1, Bunkyo, Mito, Ibaraki, 310-0056

<sup>3)</sup>Depart. of Advance Nuclear Technology, JAERI-OARAI, 3607, Narita, Oarai, Ibaraki, 311-1394

#### 1. はじめに

炭素系複合材料 (C/Cコンポジット) は、優れた高温強度特性、高熱伝導性及び良好な核特性のために、次期核融合実験装置 (ITER 等) のプラズマ対向材料や高温工学試験研究炉 (HTTR) の制御棒被覆管などとして利用が計画されている。しかし、照射損傷による微細組織や材料特性の変化の究明、及び耐照射損傷性に優れた C/Cコンポジットの開発等がさらに必要である。一方、C/Cコンポジットは、炭素繊維と炭素マトリックスからなり、黒鉛化度の低い炭素繊維の照射損傷が一般的に大きく、C/Cコンポジット全体への照射の影響を支配すると考えられる。そこで、本研究は、C/Cコンポジットの材料特性を大きく左右する炭素繊維に注目し、微細構造の異なる各種炭素繊維に対して、高エネルギーのカーボンイオン、ニッケルイオン及びアルゴンイオンを照射し、断面組織の変化及び引張特性の変化等を明らかにした。

#### 2. 実験方法

本研究に用いた試料は、微細構造の異なる 5 種類の炭素繊維であり、ピッチ系炭素繊維 (K13C2U)、メソフェーズピッチ系炭素繊維 (YS-15-60S, YS-70-60S)、PAN 系炭素繊維 (M55JB) 及び気相成長炭素繊維 (K1100X) である。

イオン照射試験は、日本原子力研究所東海研究所の TANDEM 加速器及び日本原子力研究所高崎研究所の AVF サイクロトロンを用いて行った。照射したカーボンイオンは  $^{12}\text{C}^{6+}$  で、エネルギーが 100MeV、電流が  $0.5\mu\text{A}$ 、照射損傷量が  $1\times 10^5$  dpa 又は  $3\times 10^5$  dpa であった。照射したニッケルイオンは  $^{59}\text{Ni}^{13+}$  で、エネルギーが 200MeV、電流が  $0.4\mu\text{A}$ 、照射損傷量が  $1\times 10^5$  dpa 又は  $5\times 10^4$  dpa であった。また、照射したアルゴンイオンは  $^{40}\text{Ar}^{8+}$  で、エネルギーが 175MeV、電流が  $1\mu\text{A}$ 、照射損傷量が  $1\times 10^3$  dpa であった。

炭素繊維の断面組織は、SEM を用いて観察し、その写真から直径と断面積を求めた。

炭素繊維の引張試験は、JIS の炭素繊維引張試験法 (JIS R 7601-1986) に準じて行った。中央に四角の穴をあけた台紙を用意し、単繊維を台紙の中央線に沿って真直ぐにエポキシ樹脂系接着剤で固定した。この試験片の台紙の両端をクリップで挟み、引張試験機に取り

付けた後に、台紙を線香で焼いて切断し、炭素繊維の引張試験を行った。

炭素繊維のヤング率は、応力剛化現象が見られたため、応力-ひずみ曲線の原点における傾きではなく、JIS に準じて引張強度の 25% から 50% の範囲を最小二乗法で直線近似し、その傾きをヤング率とした。

### 3. 実験結果及び考察

TRIM コードによる照射イオンの飛程は、炭素材料中 (密度  $2.2\text{g/cm}^3$ ) に対して、カーボンイオンが  $161\mu\text{m}$  であり、ニッケルイオンが  $25.5\mu\text{m}$  であり、アルゴンイオンが  $38.4\mu\text{m}$  であった。したがって、直径約  $20\mu\text{m}$  以下の炭素繊維は、照射イオンが透過し欠陥が炭素繊維の断面内で均一に生じると判断できる。

Fig.1 は、イオン照射損傷量に対する炭素繊維の断面積の変化を示す。炭素繊維の断面積は、照射損傷量の増大に伴って増大する傾向を示した[1,2]。これは、イオン照射により層面間に生じた格子間型の欠陥に基づく層面間隔の膨張によるものであると考えられる。ただし、気相成長炭素繊維 (K1100X) の断面積は、イオン照射損傷量が増大してもほぼ一定であり、耐照射損傷性に優れていた。

Fig.2 は、イオン照射損傷量に対する炭素繊維の引張強度の変化を示す。炭素繊維の引張強度は、照射損傷量の増大に伴って減少する傾向を示した[1,2]。この減少傾向は、中性子照射による影響[3]と同じ結果であり、繊維軸方向の微細構造に対する損傷効果により強度の減少を招いている可能性が考えられる。ただし、気相成長炭素繊維 (K1100X) とメソフェーズピッチ系炭素繊維 (YS-15-60S) の引張強度は、イオン照射損傷量が増大してもほぼ一定か又は増大し、耐照射損傷性に優れていた。

Fig.3 は、イオン照射損傷量に対する炭素繊維のヤング率の変化を示す。炭素繊維のヤング率は、その引張強度の変化とほぼ同様の傾向を示し、イオン照射損傷量の増大に伴って減少する傾向を示した[1,2]。ただし、気相成長炭素繊維 (K1100X) とメソフェーズピッチ系炭素繊維 (YS-15-60S) のヤング率は、イオン照射損傷量が増大してもほぼ一定であり、耐照射損傷性に優れていた。

また、本実験の範囲では、ラジアル構造よりランダム構造の炭素繊維の方が照射損傷に対して比較的良好な特性を示しているように思われた。

### 4. まとめ

本研究は、炭素繊維の照射効果の究明及び耐照射損傷性に優れた C/C コンポジットの開発に役立つ知見を得るために、5種類の炭素繊維に対して、高エネルギーの各種イオンを照射し、断面組織の変化及び引張特性の変化等を明らかにした。その結果、耐照射損傷性に優れた C/C コンポジットの材料設計には、気相成長炭素繊維及びメソフェーズピッチ系炭素繊維が有効であることが明らかとなった。

### 参考文献

- [1] T. Oku, A. Kurumada, et al., Eurocarbon 2000, 1st World Conference on Carbon, Berlin, Germany (2000.7.9-13) Vol.II, 947-948.
- [2] T. Oku, A. Kurumada, et al., J of Nuclear Materials, Letter 303 (2002) 242-245.
- [3] 奥 達雄、今村好男、車田 亮、他、TANSO, No.190 (1999) 262-266.



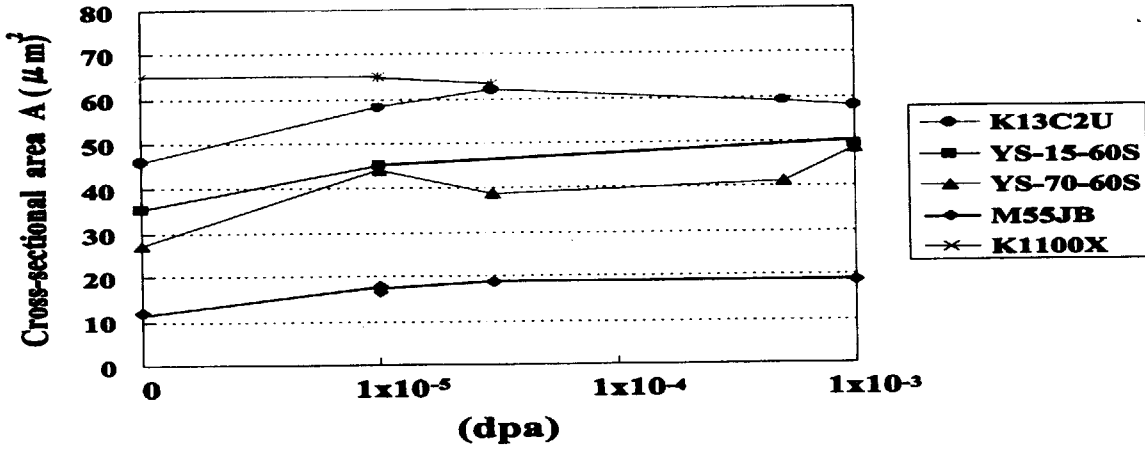


Fig.1 Cross-sectional area of irradiated carbon fibers

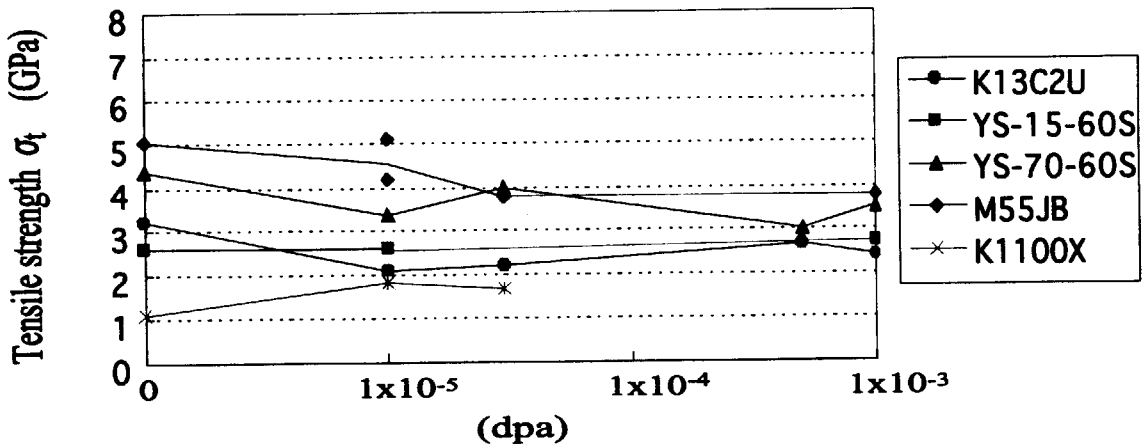


Fig.2 Tensile strength of irradiated carbon fibers

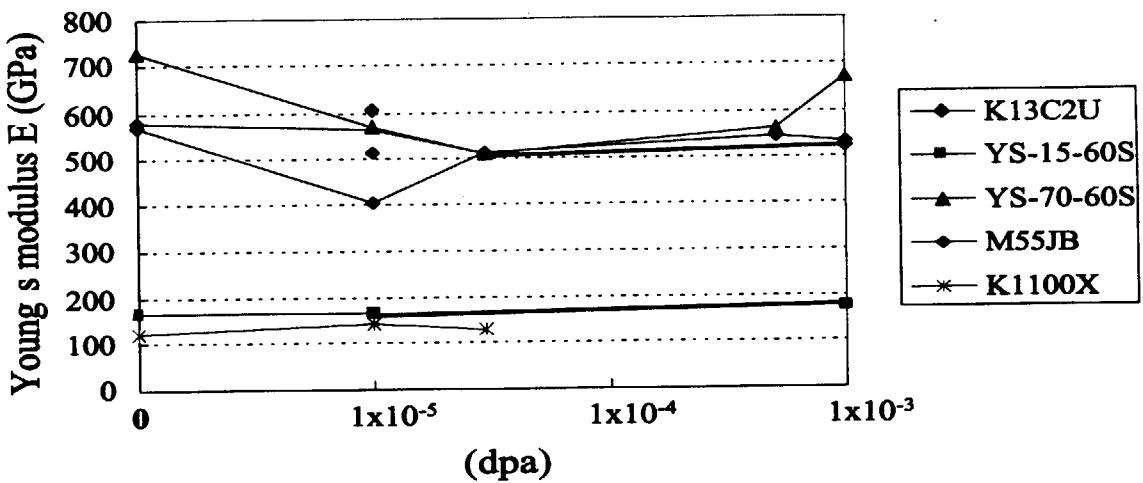


Fig.3 Young's modulus of irradiated carbon fibers



### 3.4.5 宇宙用 Power MOSFET / バイポーラトランジスタの 重イオン照射耐性に関する研究

#### Study about the Heavy-Ion irradiation tolerance of Power MOSFET and Bipolar Junction Transistors for space use

新藤浩之<sup>1)</sup>, 池田直美<sup>1)</sup>, 久保山智司<sup>1)</sup>, 松田純夫<sup>1)</sup>, 平尾敏雄<sup>2)</sup>, 神谷富祐<sup>2)</sup>  
H.SHINDO<sup>1)</sup>, N.IKEDA<sup>1)</sup>, S.KUBOYAMA<sup>1)</sup>, S.MATSUDA<sup>1)</sup>, T.HIRAO<sup>2)</sup>, T.KAMIYA<sup>2)</sup>

1) 宇宙開発事業団 技術研究本部 宇宙用部品開発推進センター

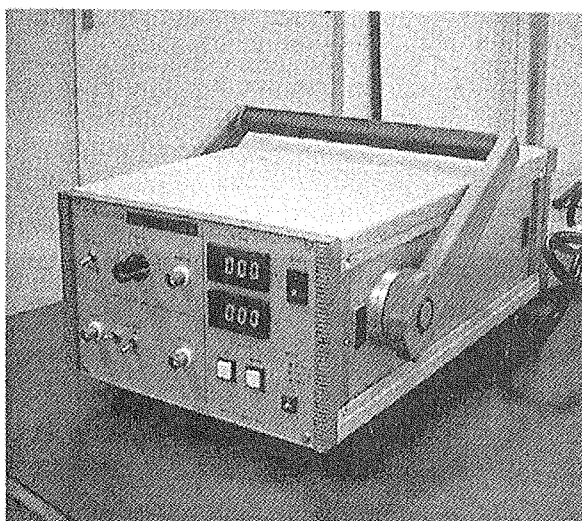
1) Space Component Engineering Center, Office of Research and Development,  
National Space Development Agency of Japan

2) 日本原子力研究所 高崎研究所 材料開発部 極限環境材料研究グループ

2) Research group for Severe Environment Materials,  
Takasaki, Japan Atomic Energy Research Institute

ロケットや人工衛星を構成する上で必須の部品である Power MOSFET やバイポーラトランジスタは、電源系をはじめとする様々な機器で使用されている。一般に宇宙で使用される半導体素子は、宇宙空間に存在する高エネルギーの重イオンに曝され、これによってシングルイベント現象と総称される誤動作・損傷を引き起こすことが知られている。Power MOSFET やバイポーラトランジスタでは、シングルイベントバーンアウト(Single Event Burnout: SEB)と呼ばれる焼損現象を引き起こすことがこれまで確認されており、SEB 耐性を向上させた宇宙用デバイスの研究開発が緊急課題となっている。これまでの東海研究所タンデム加速器を用いた研究評価用サンプルの照射試験結果から、SEB 現象は重イオンの入射をトリガーとして発生するバランシェ崩壊に起因する過電流による焼損現象であることが判明しており、現在 SEB 耐性向上策に関する研究・試作評価を進めている。本論文では、Power MOSFET およびバイポーラトランジスタの SEB 現象に関する最近の試作評価成果について報告する。

図 1 にサンプル照射試験を実施する際に使用する EPICS(Energetic Particle Induced Charge Spectroscopy)計測システム外観と回路構成を示す。本装置は、SEB



EPICS計測システム

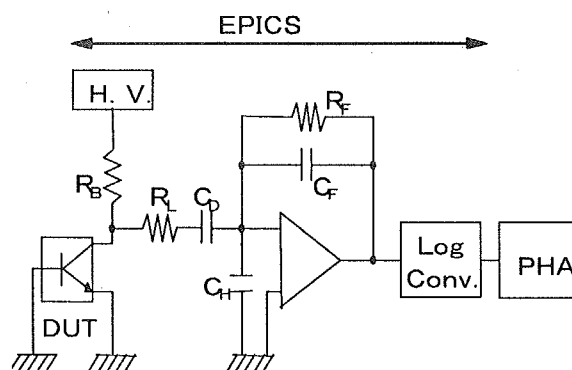
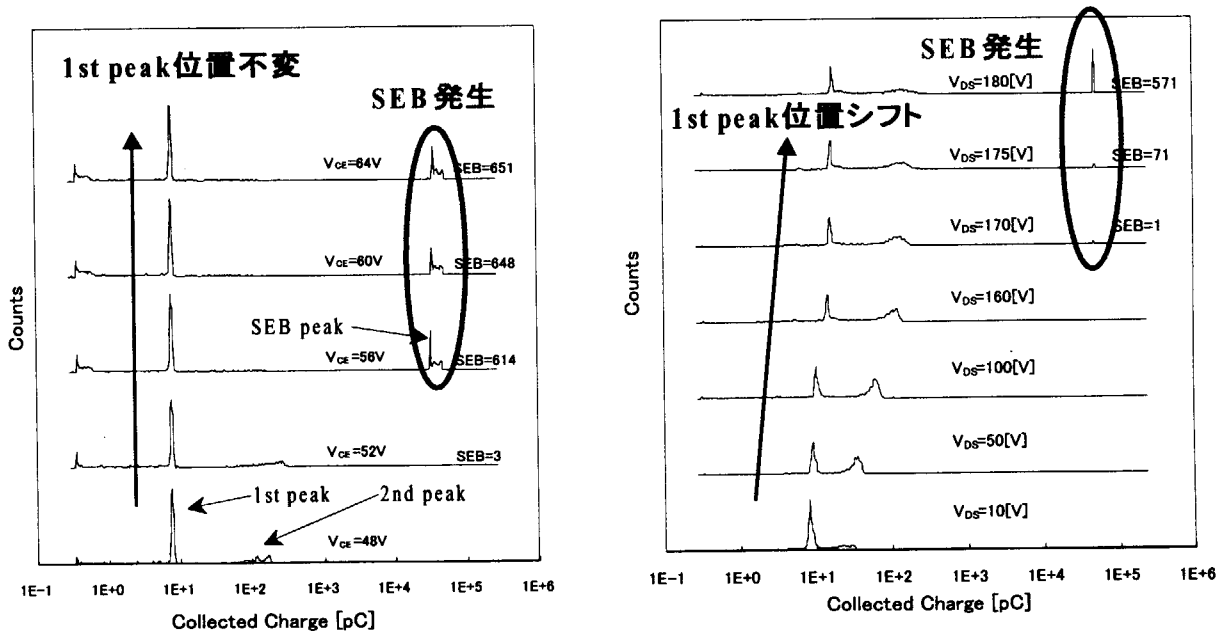


図 1 EPICS 計測システム

現象観測のために開発した装置<sup>[2]</sup>であり、照射サンプルに重イオンが入射した際に発生する収集電荷量を計測することができる。本装置を使用することによって、照射試験中に発生する SEB 現象を非破壊で観測することが可能である。照射チャンバ内に設置したサンプルと本システムを接続し、最終的に PHA においてスペクトル観測を実施する。計測結果の代表例を図 2 に示す。SEB 発生時は、非常に大きな収集電荷量の位置にピークが発生する。宇宙空間では LET=27[MeV/(mg/cm<sup>2</sup>)]が支配的であることから、照射試験ではこれに相当する 250MeV の Ni イオンを用いている。

次に Power MOSFET の試作評価結果について示す。Power MOSFET では、重イオン入射によって発生した過渡電流が、寄生サイリスタを電氣的に ON 状態へと変え、その結果、ソース・ドレイン間に大電流が流れてしまうため焼損に至る (SEB が発生) ということがこれまでの研究から判明している<sup>[1]</sup>。また、昨年度までの試作評価結果から、エピタキシャル層厚などのデバイス構造パラメータを変更することによって SEB 耐性の向上が可能であることが判明している。ところがこの変更は、デバイスが ON 状態の時の抵抗値を増大させてしまい、素子本来の電氣的性能の劣化させることになるため、この改善が課題となっていた。そこで今回の試作評価では、図 3 に示すようにエピタキシャル層の構成を再構築し、従来素子のような単一のエピタキシャル層ではなく、比抵抗値の異なる 2 段構造にすることで、ON 抵抗を低く保ったまま SEB 耐性を向上させることに成功した。照射試験結果を合わせて図 3 に示す。従来の素子と比較して、今回の評価サンプルでは SEB を誘発する指標となる収集電荷量の多い位置でのピーク発生を抑えることが可能となり、実際の照射試験でも今回の試作サンプルでは SEB は発生しないことを確認し、宇宙用 Power MOSFET 実現の目処を得ることが出来た。現在この 2 段エピタキシャル構造について、宇宙用として開発を進め



(a)バイポーラトランジスタ

(b)Power MOSFET

図 2 EPICS 観測波形例

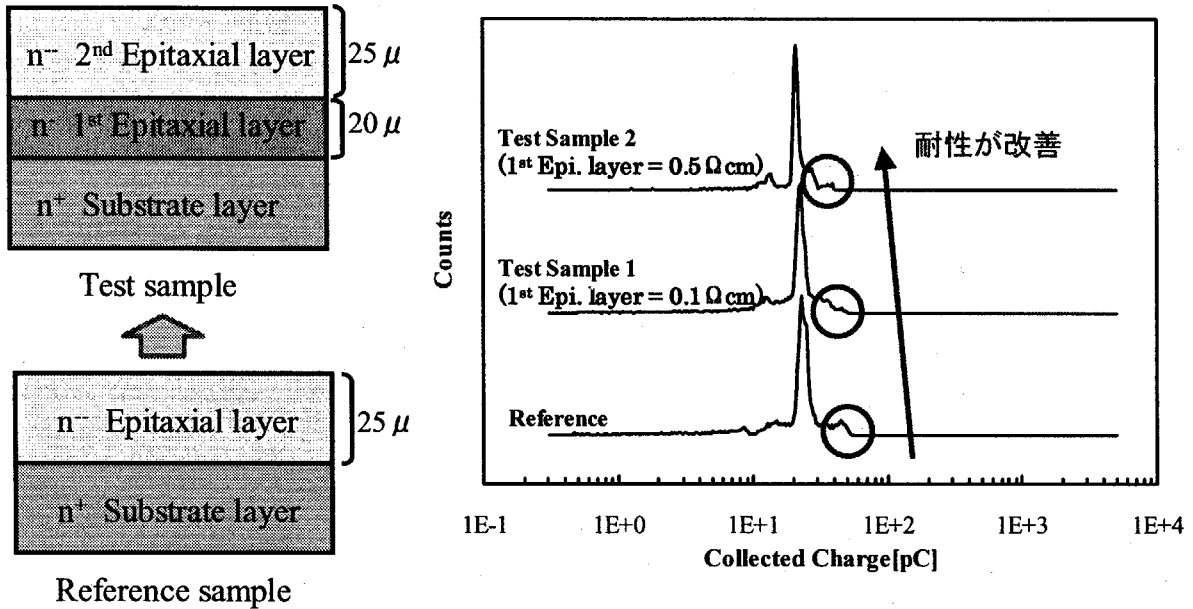


図3 2段エピ構造の照射試験結果

ている DC/DC コンバータ（平成 16 年度に完了予定）にチップ搭載することを想定して、これに合わせた構造・サイズ・性能に関する最適化と試作評価を継続して進めているところである。

バイポーラトランジスタの SEB 現象に関しては、図 2 にも示すように、Power MOSFET の場合とスペクトルの変化が異なることから、その発生メカニズムも異なることが判明している。現在、Monte Carlo シミュレーションによるメカニズム解明を実施中である。SEB の発生メカニズムについては、重イオン入射による電子/正孔の発生と移動によってエミッタ・ベース領域が順バイアスの状態となり、その結果エピタキシャル層と基板との境界面での電界強度が増加し、アバランシェ増幅が発生し SEB に至ると予想され、シミュレーションにおいてもこのことを示唆する結果が得られつつある。今後、さらにシミュレーションを進めるとともに、重イオン照射試験による検証データを収集し、両者の照合による解析を進める計画である。

以上に、Power MOSFET およびバイポーラトランジスタの試作評価結果について述べた。Power MOSFET に関しては、現在進めている最終的な試作評価を継続し、宇宙用デバイスの開発に反映させるとともに、SEB 発生を限りなく抑制するための新たな構造について検討を進めていく計画である。バイポーラトランジスタに関しては SEB 発生メカニズムの全容解明に向けて、シミュレーションおよび照射試験によるデータ収集・解析を継続して実施し、同様に宇宙用デバイスの開発に資する計画である。

#### Reference

- [1] M.Allenspach, et al, IEEE. Trans.Nucl.Sci., Vol.NS-43,No.6 (1996) 2927.
- [2] S.Kuboyama, et al, IEEE. Trans.Nucl.Sci. Vol.NS-39,No.6(1992) 1698.



### 3.4.6 複数原子イオンによる電子励起とその効果

## ELECTRON EXCITATION BY SWIFT POLYATOMIC IONS AND ITS EFFECT

金子 敏 明

T. KANEKO

岡山理科大学 大学院理学研究科

Okayama University of Science, Graduate School of Science

近年、多原子イオンを加速してそれを物質に当てて、薄膜形成や照射効果による物質改質などを旨とした研究が、基礎および応用面から盛んになってきている[1-8]。その理由の一つは、単原子イオン入射には見られない多粒子独自の照射効果が期待できることである。しかしながら、どのような条件でその効果が期待できるのか、など未知な点も多い。照射効果には、媒質原子をはじき出すことによる弾性的寄与と電子励起による非弾性的寄与がある。ここでは、核子あたり数 keV 以上のエネルギー領域を扱うので、非弾性的寄与を調べた。特に、電子励起に伴うイオンのエネルギー損失と 2 次電子励起に関する理論的考察について報告する。

従来、媒質中を運動する単一イオンが持つ平均電荷はイオンの速さだけで決まり、媒質依存性は弱い。しかし、MeV/u 程度のエネルギーをもつ炭素クラスターが炭素薄膜を透過したときの実験データによると、各粒子はどれも同じ（平均）電荷を持っているわけではない[6]。このことを説明するために、われわれは流体モデルを提案した。経験によれば、単一原子イオンの平均電荷  $Q(1)$  は、イオンの速さと、その原子内電子の平均速度の比によって特徴づけられる。これは統計モデルが適用できることを意味するのでこれを複数原子イオンに拡張した。一つのイオンに注目すると、その周囲にあるイオンはこの注目したイオンと静電的相互作用をする。そのために、注目したイオン内の電子の束縛力が増加する。これを束縛電子の平均速度の変化として理論的枠組みに取り入れた。静電的相互作用には各イオンの（平均）電荷量および各イオン間の距離が入るので、結局、各イオンの平均電荷はイオン群の配置に対して矛盾のないように決められなければならない。こうして求められた多原子イオン全体における平均電荷を  $Q(n)$  とする。n は原子数である。図 1 は、2 MeV/u の炭素クラスター  $C_8$  の平均電荷比  $Q(n)/Q(1)$  を膜厚の関数として表したものである。実線は線状構造、点線はリング構造の場合を示す。この計算には、クーロン相互作用によりイオン群のサイズが膨張する効果を取り入れている。図 1 の結果は、イオン集団での平均電荷  $Q(n)$  は、孤立しているイオンの電荷  $Q(1)$  よりも小さく、ばらばらになるにつれて  $Q(n)$  は  $Q(1)$  の値に近づいていくことを示している。われわれのモデルでは  $Q(1)$  の絶対値のみでなく、 $Q(n)/Q(1)$  の値も実験データをよく再現していることがわかった。また、クラスターの原子数が増えるにつれて、 $Q(n)/Q(1)$  の値は単調に減少すること、および、クラスターの形状によっても比の値は若干異なること、が判明した[7]。

以上の電荷に関する情報をもとに、媒質電子の励起による多原子イオンのエネルギー損失を調べた。それを求めるためには、単位厚さあたりのエネルギー損失量（阻止能）を積分することによって、注目する膜厚を透過したイオンのエネルギー損失を求めた。多原子イオンを特徴づけるものは、個々のイオンの電荷量と束縛電子の空間分布、および、構成イオンの空間構造である。われわれは誘電関数法により、媒質電子系の阻止能を評価した。媒質中の伝導電子に対しては電子ガスに対するリントハルトの誘電関数を用い、内殻電子に対しては波束モデルでの誘電関数を用いる。また、イオン群が媒質内を進行していくときのイオン間距離は、分子動力学法により運動方程式を数値的に解いて決められた。このとき、イオン群が進行中に特別な配向はとらずランダムであると仮定しているため、イオン間の相対距離の大きさだけが重要である。以上のモデルで、炭素薄膜（250Å）を通過した炭素クラスターイオン $C_n$ のエネルギー損失量を $\Delta E(n)$ とする。一方、同じ速さの単一イオン $C$ のエネルギー損失量を $\Delta E(1)$ とする。複数原子イオンの照射効果を知る上では、 $RE_1 = \Delta E(n)/n - \Delta E(1)$ あるいは $RE_2 = \Delta E(n)/[n\Delta E(1)]$ を定義すると便利である。 $RE_1 > 0$ あるいは $RE_2 > 1$ ならば、クラスター入射の方が単一イオン入射の場合よりも、エネルギー付与という点では効率がよいことになる。図2と3は、炭素原子あたり2.275MeVと3.40MeVのエネルギーをもつ炭素クラスターに対して、 $RE_1$  (keV)のクラスターの原子数(n)依存性を示したものである。■は実験値[5]、○と◇は計算値を示す。図からわかるように、クーロン爆発を考慮したわれわれの計算結果は実験データ[5]をよく説明している。ここで注目することは、平均電荷 $Q(n)$ は $Q(1)$ よりも小さいにも拘わらず、 $RE_1 > 0$ となっていることである、もし $Q(n) = Q(1)$ と仮定して計算をすると、図の×印が示す結果となって、 $RE_1 > 0$ を誇張しすぎて実験データをうまく説明できないこともわかる。また、炭素原子1個あたりのエネルギーが1MeV以下になると $RE_1 < 0$ となることも理論的に予言できた。これも実験データと一致した。

次に、イオン照射下での2次電子のカイネティック放出による収量 $\gamma$ を考える。簡単なモデルによれば、 $\gamma$ はイオンに対する物質の阻止能に比例する。最近の工藤らによる実験[8]で、Nb標的に対して1原子あたり500keVのエネルギーをもつ炭素イオン $C_n$  ( $n=1, 4, 8$ )を照射したとき、2次電子収量 $\gamma(n)$ の相対値 $R_\gamma = \gamma(n)/\{n \times \gamma(1)\}$ が $n=4$ では $R_\gamma = 0.85$ 、 $n=8$ では $R_\gamma = 0.8$ 程度であると報告された。そこでわれわれは、エネルギー損失量 $\Delta E(n)$ を評価した。2次電子の脱離深さは大雑把には100Å程度であるから、図4のような $RE_2$ の結果から $R_\gamma$ を推定できる。すなわち、 $C_4$ の線状構造（図中の実線）と菱形構造（図中の破線）に対しては、各々、 $RE_2 = 0.97$ と0.94、また $C_8$ の線状構造（図中の点線）とリング構造（図中の一点鎖線）では、各々、0.96と0.91程度となることがわかった。この結果は、実験データを少なくとも定性的に説明している。なお、この研究は文部科学省の科研費(14550052)の助成を得ている。また、大学院修士課程の加藤剛君、原研の佐高氏に感謝いたします。

## Reference

- [1]. E. Ray et al., Nucl.Instr.Meth. in Phys.Res. B 69, 133 (1992).

- [2]. M. Vicanik et al., Phys.Rev. A46, 5745 (1992).
- [3]. T. Kaneko, Phys.Rev. A 33, 1602 (1986).
- [4]. T. Kaneko, Phys.Rev. A 51, 535 (1995).
- [5]. K. Baudin et al., Nucl.Instr.Meth. in Phys.Res. B 94, 341 (1994).
- [6]. A. Brunelle et al., Phys.Rev. A 59, 4456 (1999).
- [7]. T. Kaneko, Phys.Rev. A66, 052901 (2002).
- [8]. H. Kudo et al., 日本物理学会 (2003年3月28日) 講演番号 28pXD8

図1 (上段右側の図) :  
C 8 の平均電荷比  $Q(n)/Q(1)$  の  
膜厚依存性

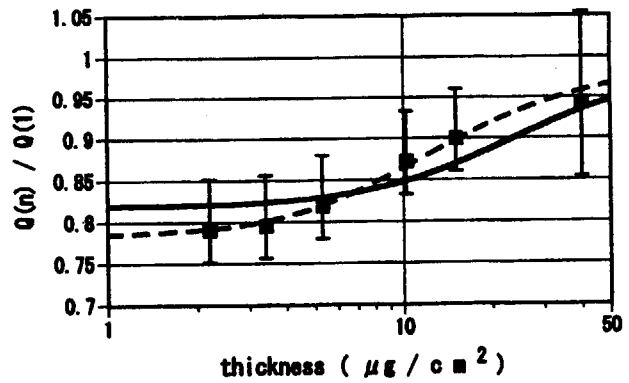


図2 (中段左側の図) :  
2.275MeV/atom  $C_n$  の  $RE_1$  値の  
n 依存性

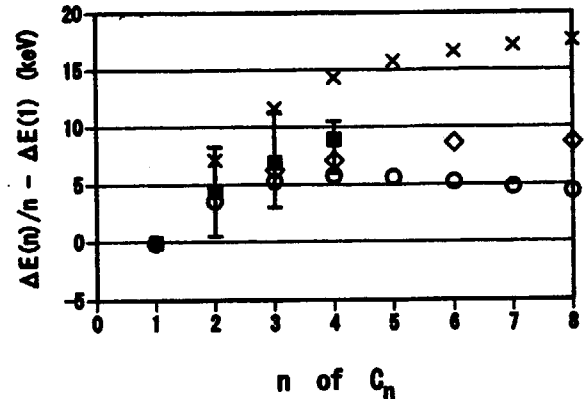
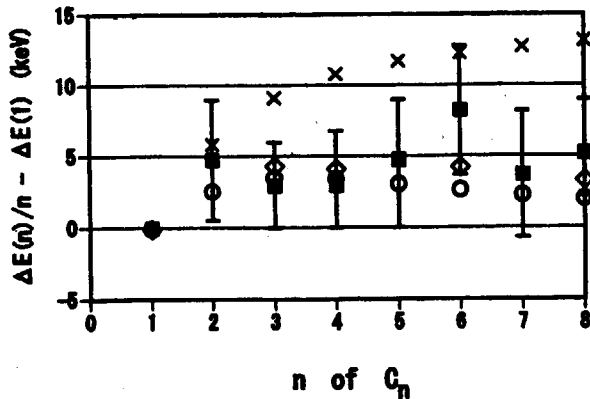
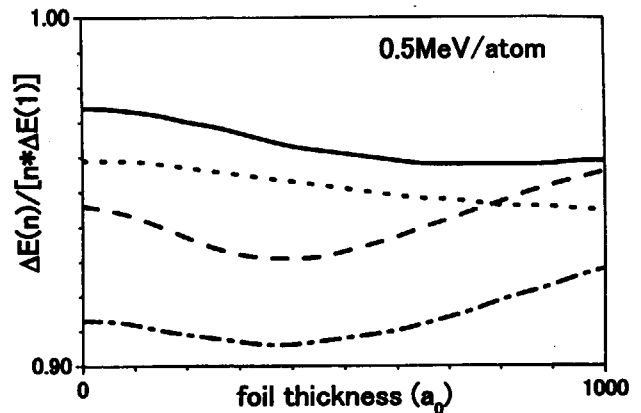


図3 (中段右側の図) :  
3.40 MeV/atom  $C_n$  の  $RE_1$  値の  
n 依存性。

図4 (下段右側の図) :  
0.50MeV/atom  $C_n$  (n=4, 8) を Nb  
に照射したときの  $RE_2$  値の膜厚依  
存性。





### 3.4.7 HIGH-RESOLUTION ZERO-DEGREE ELECTRON SPECTROSCOPY OF HIGHLY CHARGED IONS

多価イオンの高分解能0度電子分光

M. IMAI<sup>1</sup>, M. SATAKA<sup>2</sup>, S. KITAZAWA<sup>2</sup>, K. NISHIO<sup>2</sup>, Y. SUGIYAMA<sup>2</sup>,  
K. KAWATSURA<sup>3</sup>, K. TAKAHIRO<sup>3</sup>, K. KOMAKI<sup>4</sup>, H. SHIBATA<sup>5</sup>, H. TAWARA<sup>6</sup>,  
T. AZUMA<sup>7</sup>, Y. KANAI<sup>8</sup> and Y. YAMAZAKI<sup>4,8</sup>  
今井誠<sup>1</sup>, 左高正雄<sup>2</sup>, 北澤真一<sup>2</sup>, 西尾勝久<sup>2</sup>, 杉山康治<sup>2</sup>, 川面澄<sup>3</sup>, 高廣克己<sup>3</sup>,  
小牧研一郎<sup>4</sup>, 柴田裕実<sup>5</sup>, 俵博之<sup>6</sup>, 東俊行<sup>7</sup>, 金井保之<sup>8</sup>, 山崎泰規<sup>4,8</sup>

<sup>1</sup>Department of Nuclear Engineering, Kyoto University

<sup>2</sup>Department of Materials Science, JAERI

<sup>3</sup>Department of Chemistry and Materials Technology, Kyoto Institute of Technology

<sup>4</sup>Institute of Physics, Graduate School of Arts and Sciences, University of Tokyo

<sup>5</sup>Research Center for Nuclear Science and Technology, University of Tokyo

<sup>6</sup>Max-Planck-Institut für Kernphysik

<sup>7</sup>Department of Physics, Tokyo Metropolitan University

<sup>8</sup>Atomic Physics Laboratory, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

<sup>1</sup>京都大院・工学, <sup>2</sup>原研・物質科学, <sup>3</sup>京都工繊大・工芸, <sup>4</sup>東京大院・総合文化,

<sup>5</sup>東京大・原総センター, <sup>6</sup>マックスプランク研究所, <sup>7</sup>都立大・物理, <sup>8</sup>理研・原子物理

Penetration of ions through solid target has been investigated in many aspects [1]. Production of Rydberg states of fast projectiles interacting with foil targets has been providing attractive subjects among them [2]. The method of zero-degree electron spectroscopy [3], in which the secondary electrons emitted from the projectile and/or electrons captured or lost to the continuum are measured at zero degrees, has proven to be one of the excellent tools to study collision dynamics of highly charged ions colliding with gaseous and solid targets.

We have been devoted ourselves to measuring Coster-Kronig (C-K) electrons from  $S^{12+}$  [4] and  $Si^{5+}$  [5] ions excited through He or C-foil target, and succeeded in reproducing the experimental spectra with C-K electron energies calculated by perturbation theory of Z-expansion method (MZ code), weighed by assumed ion charge distributions "inside" the foil [6,7]. We have started extending our work to extract a detailed information for ionic states "inside" the foil, as well as studying other projectiles systematically. The results for 2.0 MeV/u  $S^{6+}$  and  $Ar^{14+}$  ions penetrating through C-foil targets are presented in the present work, together with the charge state distribution of sulfur projectile, measured after foil penetration.

The zero-degree electron spectroscopy has been performed at HIR2-2 beam line of the Tandem Accelerator at JAERI, Tokai. As the experimental apparatus have already been presented previously [4,5,8], only the major parameters are given here. Measured are the electrons emitted from sulfur or argon projectile passing through C-foil target. A beam of 2.0 MeV/u  $S^{7+}$  or  $Ar^{6+}$  was provided by the accelerator and was guided directly into the target for  $S^{7+}$  injection. As for  $S^{10+}$ ,  $S^{12+}$ ,  $S^{13+}$  and  $Ar^{14+}$  projectiles, a fraction of the primary  $S^{7+}$  or  $Ar^{6+}$  beam was selected by switching magnet after passing a post stripper foil. Electrons emitted from the projectile were energy analyzed by a tandem electrostatic analyzer set at zero degrees with respect to the beam direction. The laboratory frame spectrum, which has a famous cusp-shaped peak centered at 1.10 keV and C-K electron peaks on both wings of the cusp, is obtained by scanning the retarding potential between the first and the second analyzers, as shown in Fig. 1(a). Two spectra corresponding to the low and the high energy



wings of the cusp are obtained from measured spectrum by converting the laboratory frame spectrum into the projectile rest frame, resulting in the energy resolution of 0.02–0.2 eV, according to the electron energy. The charge state distributions for 2.0 MeV/u  $S^{6+}$  ion after passing through C-foil target of various thicknesses (0.9–10 g/cm<sup>2</sup>) have been measured at LIR1–3 beam line of the Tandem Accelerator, utilizing the heavy ion magnetic spectrometer ENMA [9].

In Figs. 1(b) and 2 shown are the C-K electron spectra from 2.0 MeV/u  $S^{6+}$  and  $Ar^{14+}$ , respectively, through C-foil of 6.9 g/cm<sup>2</sup> in thickness. The repetitive peaks are assigned to 7 series of C-K transitions as marked (1), (2), (a), (a'), (b), (b') and (b'') in the figures. Each series comes from transitions of

- (1)  $S^{12+} 1s^2 2p(^2P_{3/2}^{\circ})nl - 1s^2 2s(^2S_{1/2})\hat{a}l'$  (29.69 eV),
- (2)  $S^{12+} 1s^2 2p(^2P_{1/2}^{\circ})nl - 1s^2 2s(^2S_{1/2})\hat{a}l'$  (27.81 eV),
- (a)  $Ar^{14+} 1s^2 2p(^2P_{3/2}^{\circ})nl - 1s^2 2s(^2S_{1/2})\hat{a}l'$  (35.04 eV),
- (a')  $Ar^{14+} 1s^2 2p(^2P_{1/2}^{\circ})nl - 1s^2 2s(^2S_{1/2})\hat{a}l'$  (31.88 eV),
- (b)  $Ar^{13+} 1s^2 2s 2p(^3P_2^{\circ})nl - 1s^2 2s^2(^1S_0)\hat{a}l'$  (31.33 eV),
- (b')  $Ar^{13+} 1s^2 2s 2p(^3P_1^{\circ})nl - 1s^2 2s^2(^1S_0)\hat{a}l'$  (29.24 eV),
- (b'')  $Ar^{13+} 1s^2 2s 2p(^3P_0^{\circ})nl - 1s^2 2s^2(^1S_0)\hat{a}l'$  (28.35 eV),

where  $n$  starts from 10, except for (1) that starts from 9, and counts up as the peak energy grows for all transitions. The energy values in parenthesis give the series limits. The marked energies are obtained as

$$E = \Delta E - Q^2 Ry / 2n^2,$$

where  $\Delta E$  is the energy level of the initial core configuration counted from ground (final) configuration,  $Q$  the effective charge of the core configuration (assumed to be +13, +15 and +14 for (1), (a) and (b) series, respectively), and  $Ry/2$  the Rydberg energy 13.606 eV. For  $\Delta E$ , compiled level data for S XIII, Ar XV and Ar XVI taken from "NIST Atomic Spectra Database" [10] are used. These assignments show that  $S^{13+} 1s^2 2p(^2P)$  state has a significant importance even for  $S^{6+}$  ion injection, and that both  $Ar^{15+} 1s^2 2p(^2P)$  and  $Ar^{14+} 1s^2 2s 2p(^3P)$  states play an important role in penetrating  $Ar^{14+}$  ions through thin carbon film.

Fig. 3 shows the charge state distribution of  $S^{6+}$  ions after penetrating C-foils of various thicknesses (0.9–10 g/cm<sup>2</sup>). It can be seen that the fractions of  $S^{12+}$ ,  $S^{13+}$  and  $S^{11+}$  ions are the most prominent ones at 6.9 g/cm<sup>2</sup> target thickness, supporting the fact that  $S^{13+} 1s^2 2p(^2P)$  state has a significant importance even for  $S^{6+}$  ion injection. These behaviors can be understood generally by the number of  $S^{13+}$  core-ions and of entrained-electrons, released from the projectile, inside the target, as has been pointed out in Ref. [4] that not only the number of entrained electrons but charge evolution of the projectile inside solid should be included for the practical understanding of the peak intensity dependence on foil thickness and projectile initial charge.

## References

- [1] U. Majewska *et al.*, J. Phys. **B35**, 1941 (2002).
- [2] Y. Yamazaki, Nucl. Instr. Meth. **B96**, 517 (1995).
- [3] N. Stolterfoht, Phys. Rep. **146**, 315 (1987).
- [4] M. Imai *et al.*, Nucl. Instrum. Methods **B193**, 674 (2002).
- [5] M. Imai *et al.*, Physica. Scripta **T73**, 93 (1997).
- [6] M. Sataka *et al.*, Phys. Rev. **A65**, 052704 (2002).
- [7] M. Sataka *et al.*, J. Phys. **B35**, 267 (2002).

- [8] K. Kawatsura *et al.*, Nucl. Instrum. Methods **B48**, 103 (1990); *ibid.* **B53**, 421 (1991); *ibid.* **B124**, 381 (1997).  
 [9] Y. Sugiyama *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **A281**, 512 (1989).  
 [10] Available free online at [http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main\\_asd](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main_asd).

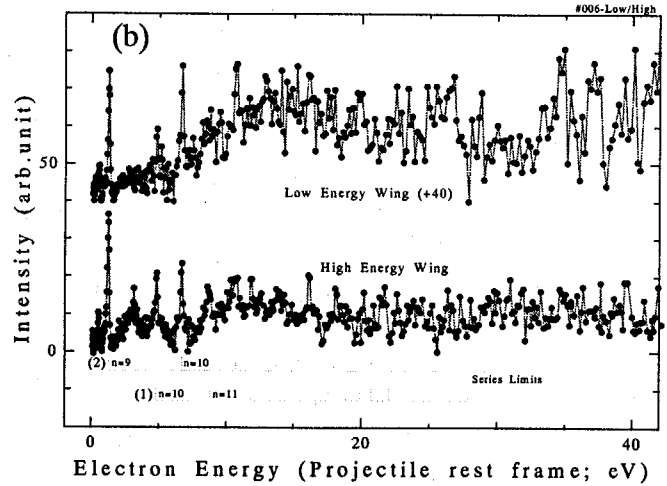
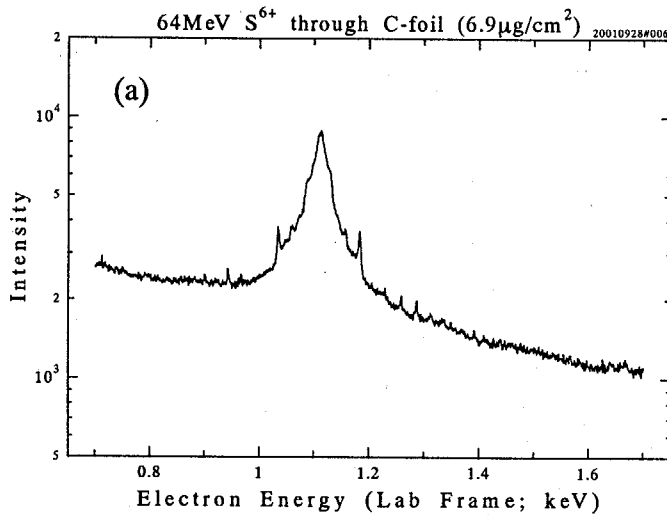


Fig. 1 (a) Electron energy spectrum in the laboratory frame for 64 MeV  $S^{6+}$  ions passing through  $6.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  C-foil measured at zero degrees. (b) Electron energy spectra transformed into the projectile rest frame.

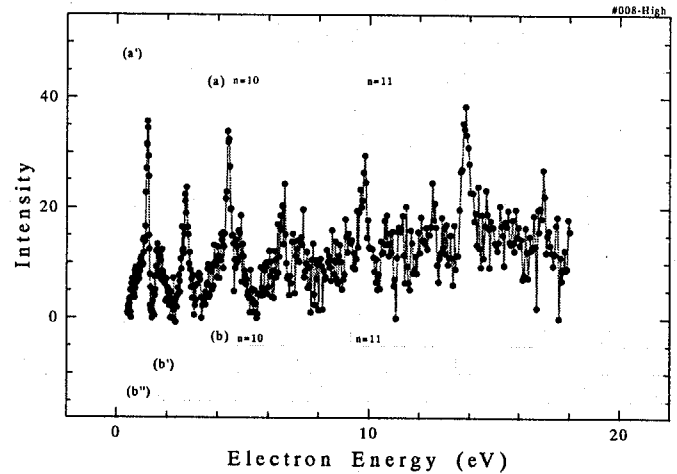


Fig. 2 Spectrum of electrons ejected at zero degrees in 80 MeV  $Ar^{14+}$  + C-foil ( $6.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) collision. Energy refers to the projectile rest frame.

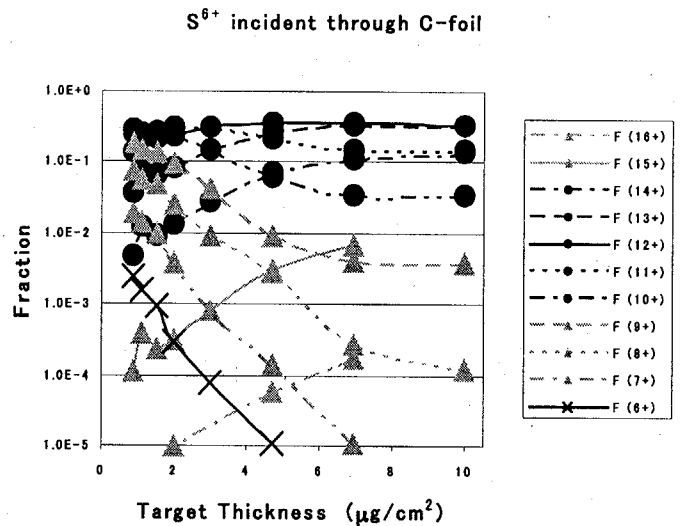


Fig. 3 Charge state distribution of  $S^{6+}$  ion incident after passing through C-foils of various thicknesses ( $0.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  to  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ).



### 3.4.8 ELECTRONIC EXCITATION EFFECTS ON OXIDE CERAMICS BY HIGH ENERGY IONS 高エネルギーイオン照射によるセラミックス中の電子励起効果

N. MATSUNAMI<sup>1</sup>, O. FUKUOKA<sup>1</sup>, M. SATAKA<sup>2</sup>, S. OKAYASU<sup>2</sup> and A. IWASE<sup>2\*</sup>  
松波 紀明<sup>1</sup>, 福岡 修<sup>1</sup>, 左高 正雄<sup>2</sup>, 岡安 悟<sup>2</sup>, 岩瀬 彰宏<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup> Center for Integrated Research in Science and Engineering, Nagoya University,  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-city 464-8603, Japan

名古屋大学理工科学総合研究センター, 464-8603, 愛知県名古屋市千種区不老町

<sup>2</sup> Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute,  
Tokai-mura 319-1195, Ibaraki, Japan

日本原子力研究所物質科学部, 319-1195, 茨城県那珂郡東海村

Electronic excitation effects induced by high-energy ions have attracted considerable attention for material modifications. We have measured sputtering yields of insulating oxide ceramics to investigate the electronic excitation effects on atomic displacement, applying a carbon (C)-film collector method [1-3]. Samples were amorphous (a)-SiO<sub>2</sub> (bulk and ~300 nm film on Si), single crystal (c)-SiO<sub>2</sub>, 5% Yb-doped SrCeO<sub>3-δ</sub> (SCO; ~100 nm film on MgO and polycrystal), SrTiO<sub>3</sub> (STO; single crystal and ~100 nm film on MgO), CeO<sub>2</sub> (~1 μm film on MgO), c-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, c-MgO, c-TiO<sub>2</sub>, ZnO (~100 nm film on MgO and single crystal) and c-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. These samples were subject to irradiation of Xe, I, Ni, Ar and S ions of ~1 MeV/u. Sputtered atoms were accumulated in the C-films and analyzed by 1.8 MeV He Rutherford backscattering spectroscopy. The sputtering yield of each component was deduced from the linear part of the amount of atoms in the collector vs the ion dose (less than 10<sup>14</sup>/cm<sup>2</sup>), as shown in Fig. 1, together with the calibrated collection-efficiency of the C-films, which is in between 0.25 (Zn, Ce, Yb) and 0.55 (Sr) [2]. The validity of the C-film collector method is described in [3].

We find the followings. Sputtering yields of each component are roughly proportional to the composition (roughly stoichiometric sputtering). Also, they are insensitive to sample states, single crystal or film, e.g., 89 MeV Ni on a-SiO<sub>2</sub> (Fig. 1) and ZnO, 99 MeV Xe on STO, and 84 MeV I, 80 MeV S and 60 MeV Ar on ZnO. The experimental sputtering yields Y (atoms per ion), i.e., sum of sputtering yield of each component, do not follow either the mean charge of ions after transmission through the C-film or the nuclear stopping power [2]. The yields are larger by 30 - 2000 than the calculated yields based on the elastic collision cascades. Hence the electronic excitation effects are dominant in the sputtering of the oxides (electronic sputtering). The electronic sputtering yields increase super-linearly with the electronic stopping power Se:  $Y=(BSe)^n$ . The values of B (nm/keV) and n are given as sample (B, n): a-SiO<sub>2</sub> (0.58, 3), c-SiO<sub>2</sub> (0.58, 3), SCO (0.8, 2.2), STO (0.14, 3.6), CeO<sub>2</sub> (0.12, 4), c-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0.25, 1.4), c-MgO (0.075, 3), c-TiO<sub>2</sub> (0.18, 2.5), ZnO (0.15, 1.8), and c-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (0.13, 1.8). It appears that the exponent n varies from 1.4 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) to 4 (CeO<sub>2</sub>) and that the B and n values are the same for a- and c-SiO<sub>2</sub>.

\*Present address: Research Institute for Advanced Science and Technology, Osaka Prefecture University, Gakuen-cho1-2, Sakai-city 599-8570, Osaka, Japan  
大阪府立大学先端科学研究所, 599-8570, 大阪府堺市学園町 1-2

The representative sputtering yields taken at  $Se = 15 \text{ keV/nm}$  (medium  $Se$  in this study) vs the band gap ( $E_g$ ) are shown in Fig.2. Here,  $E_g$  of  $a\text{-SiO}_2$ ,  $\text{SCO}$ ,  $\text{STO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{TiO}_2$ , and  $\text{ZnO}$  are 8.3, 7.5, 3.4, 8.8, 7.7, 3.2 and 3.2 eV, respectively [2].  $E_g$  of  $c\text{-SiO}_2$  is 8.9 eV [4] and that of  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  is 5.1 - 7.8 eV [5,6].  $E_g$  of  $\text{CeO}_2$  is determined as 3.4 eV by optical absorption measurement [7]. The sputtering yield of  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  at  $Se = 15 \text{ keV/nm}$  is  $\sim 3$  and in between  $\text{MgO}$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . It has been suggested that the electronic sputtering yield at a given electronic stopping power has the upper limit which depends on  $E_g^4$  as indicated by the dotted line in Fig. 2 [2]. It is reasonably assumed that the relaxation time from the highly excited states just after the ion impact to the lower excited states is very short and thus the available energy to the atomic displacement is due to the transition of electrons at lower excited states to the ground states (recombination) which is presumably determined by the band gap. The recombination-induced sputtering suggests that thermal spike model is not appropriate. Super-linear dependence of the electronic sputtering yields on the band gap implies that the multiple excited states come into play. One notices that the  $E_g$  dependence is effective even if  $Se$  is replaced by the energy deposition per atom, i.e,  $Se$  times the mean atomic spacing  $d$ , since variation of  $d$  (inverse of the cubic root of the atomic density) is relatively small, 0.204 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) to 0.251 nm ( $c\text{-SiO}_2$ ).

The sputtering yields of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$  and  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  are small, though their band gaps are large. Obviously, electron-phonon coupling is another factor for the electronic sputtering. No systematic trend has been revealed by the mobility (a possible candidate of the electron-phonon coupling) [2]. This subject, and the relation with the track formation and track volume are to be investigated.

Another important subject is the charged fraction of the sputtered particles. We have measured the positive ion yields by ions transmitted through a C-film and by using a double-cylindrical Faraday-cup, which was negatively biased (typically -100V). A bias of 1.2 kV was applied to the C-film to minimize the effects due to electrons emitted from the C-film. According to preliminary results, the positive ion yields is  $\sim 15$  for 90 MeV Ni on  $\text{SiO}_2$  film on Si, taking into account that the mean charge of Ni ions after C-film transmission is 19. The positive ion yields are roughly 10 %. The fraction will be much reduced, when the corrections due to the electron emission from the Faraday cup [8]. Hence, the charged fraction is very small and neutral components are dominant in the electronic sputtering. This result is not favor with the Coulomb explosion model.

The authors thank Mr. T. Masuda for technical assistance of ion beam analysis.

#### REFERENCES

- [1] N. Matsunami, M. Sataka, A. Iwase, Nucl. Instrum. Meth. B193(2002)830.
- [2] N. Matsunami, M. Sataka, A. Iwase, S. Okayasu, Nucl. Instrum. Meth. B(2003, in press).
- [3] N. Matsunami, M. Sataka, A. Iwase, T. Inami, M. Kobiyama, J. Nucl. Mater. 302(2002)206.
- [4] D.L. Griscom, J. Non-Crystalline Solids 24(1977)155.
- [5] D. Jia, W. M. Yen, J. Luminescence (2003, in press).
- [6] M. L. Bortz, R. H. French, D. J. Jones, R. V. Kasowski, F.S. Ohuchi, Phys. Scripta 41(1990)4404.
- [7] N. Matsunami and M. Tazawa (private communication).
- [8] N. Matsunami, E. Hatanaka, J. Kondoh, H. Hosaka, K. Tsumori, H. Sakaue, H. Tawara, Phys. Scripta 65(2002)278.



### 3.4.9 IRRADIATION EFFECTS ON $MgB_2$ SINTERED SAMPLES $MgB_2$ の照射効果

S. OKAYASU, M. SATAKA, H. IKEDA<sup>1</sup> and R. YOSHIKAZAKI<sup>1</sup>  
岡安悟、左高正雄、池田博、吉崎亮造

JAERI, <sup>1</sup>Univ. of Tsukuba  
原研、筑波大物質工<sup>1</sup>

We investigated irradiation effects on sintered  $MgB_2$  samples to improve the pinning properties of this new coming superconducting material for its practical applications.

Synthesis of  $MgB_2$  was accomplished by a solid state reaction. Starting materials for the synthesis were high purity powders Mg and B. They were mixed and ground, then pressed into a small compound rod for sintering process. The rod was placed into a stainless tube, and the tube was put into a tube furnace. The sample was then sintered at 1193 K for 2 hours. Throughout the sintering process, high purity argon gas was flown in the furnace to avoid unexpected reactions such as MgO or BN. After the sintering, the sample was cut into small pieces. The superconducting properties were measured by a commercial SQUID magnetometer (MPMS, Quantum Design). We obtained the following results.

Electron irradiation reduces the bulk pinning properties of this material[1,2]. Electron irradiation usually introduces point-like defects into the interior of a crystal. For polycrystallines or sintered materials, however, grain boundaries are affected much more with the irradiation because combining energies among the boundaries are smaller than the binding energies knocking atoms out from inside crystals. Thus, electron irradiation acts on the degradation of coupling among the boundaries, instead of introducing pinning centers into the interior of the crystal. Considering the fact that the degradation of pinning with the irradiation coincides with the degradation of coupling among boundaries, pinning on the boundaries plays important roles for the bulk pinning of this material. In other word, it is very important to improve coupling among the boundaries for improvement of pinning for the bulk material

A comparison of irradiation effects between neutron and high-energy boron-ion (45MeV) irradiation on  $MgB_2$  bulk samples was investigated[3]. The irradiation doses were  $8 \times 10^{17}$  n/cm<sup>2</sup> (thermal neutron) and  $2 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> (B ion), respectively. Although the amount of defects are almost the same of the order ( $10^{-2}$  dpa) for both two cases, irradiation effects on superconducting properties of the material are completely different.

No change on the transition temperature  $T_c$  can be observed for the boron irradiated case, but a significant decrease for the neutron. This is because that leading process of defect formation is entirely different between the two cases. For the B-irradiation, nuclear collisions among bombarding ions and lattice atoms are dominant for the defect formation processes. Primary knock-on atoms flick

out about 10 surrounding atoms and defect will be formed. In this situation, however, the flicked atoms remain near their original positions. The overall crystal structure may not be damaged severely.

For the neutron case, on the other hand, the defect formation is mainly originated in the most probable nucleus reaction  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ . A  $^{10}\text{B}$  atom captures a thermal neutron (cross section  $3.8 \times 10^{-25} \text{ m}^2$ ), and this process makes two high energetic particles, 1.7MeV- $\alpha$  and 1MeV- $^7\text{Li}$ , respectively. It is worth emphasizing that the boron site is certainly affected with the reaction. As the result of this reaction, the boron atom in the crystal structure is replaced to a lithium atom, and band structure of  $\text{MgB}_2$  will be affected seriously. M. Eisterer et al. compared irradiation effects between fast and thermal neutron [4]. Due to a low nuclear reaction cross section between a fast neutron and a boron atom or a magnesium atom, defect formation process of the former is similar to B-irradiated case, i. e. nuclear collisions. No decrease of Tc is observed for the fast neutron irradiation. The transition temperature decreases for the thermal neutron case only. It is obvious that the nuclear reaction above mentioned plays an important role for the deterioration of superconductivity of this material. Thus the following important conclusion is derived that the B-originated fermi surfaces are important for the appearance of the superconductivity on  $\text{MgB}_2$ . This result is consistent with calculations for the band structure of this material representing superconducting gaps derived from boron band [5].

Columnar defects introduced by heavy ion irradiation are well known as strong pinning centers to greatly improve pinning properties of high-Tc superconductors [2]. It is worth confirming the effectiveness of the heavy ion irradiation on the pinning properties for the new material. Heavy ion irradiation was accomplished at the TANDEM accelerator in JAERI with 200MeV Au ions and the ring cyclotron in RIKEN with 3.54GeV Xe ions. The irradiation dose was  $1 \times 10^{11}$  ions/cm<sup>2</sup> corresponding to the matching field  $B_\phi = 2$  tesla. For both cases, no enhancement of the critical current densities Jc in the lower field region can be observed in any temperature range, however, the irreversibility field  $B_{ir}$  shifts to the higher field region. For high-Tc superconductors, columnar defects improve both the magnitude of the Jc and the  $B_{ir}$ . For  $\text{MgB}_2$ , on the other hand, they improve only the latter. It is unlikely that the columnar defect formation will occur in  $\text{MgB}_2$  due to the large number of carrier densities. There is no doubt, however, that the defects introduced by the irradiation act as pinning centers. The improvement of pinning process is still unclear, and further investigation is needed.

#### REFERENCES

- [1]Okayasu S. et.al., Physica C 378-381 (2002) 462
- [2]Okayasu S. et.al., Physica C 382 (2002) 104
- [3]Okayasu S. et. al., J. of Low Temp. phy. 131(2003)
- [4] M. Eisterer et al., Supercond. Sci. Technol. 15 (2002) L9
- [5]H.J. Choi et al., cond-mat/0111183



### 3.4.10 高エネルギーイオン照射した $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ の非晶質化

中沢哲也<sup>a</sup>, V. Grismanovs<sup>b</sup>, 八巻大樹<sup>a</sup>, 片野吉男<sup>a</sup>, 有賀武夫<sup>a</sup>

<sup>a</sup> 日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部

<sup>b</sup> OECD Halden Reactor Project

#### 1. はじめに

$\text{Li}_2\text{TiO}_3$  セラミックスは核融合炉における固体トリチウム増殖材料の有力な候補材料である[1]. 核融合炉稼働下では  ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$  反応によって生成する高速中性子, 高エネルギートリチウム (2.7MeV) 及び高エネルギーヘリウム (2.1MeV) による照射損傷が材料内で引き起こされるため, 材料内に生じる微細な構造変化はトリチウム放出挙動や熱的及び機械的特性に大きな影響を与えると考えられる. 従って, 増殖材料の照射欠陥や微細構造変化を調べることは材料特性を評価するうえで重要である. しかしながら, その重要性にもかかわらず照射損傷機構に関する研究は少ない [2, 3]. 最近, 我々は, 343 から 873 K の温度範囲でトリプスイオン照射 ( $\text{H}^+$ ,  $\text{He}^+$  and  $\text{O}^{2+}$ ) した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の表面層にアナターゼ構造の  $\text{TiO}_2$  が生成することを確認した[4]. そこで, 本研究ではイオン照射が引き起こす  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の構造変化に関するより詳しい情報を得るため, 高エネルギー重イオンを  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  に照射し, その構造の変化を調べた.

#### 2. 実験方法

$\text{Li}_2\text{TiO}_3$  溶融体は赤外線加熱単結晶製造装置を使い  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  粉末 (純度: 99%, CERAC 製) から作製した焼結体をアルゴンガス気流中で帯熔融することで得た. 得られた溶融体は大きめの結晶質 (直径: 約 3mm) の粒でできていた. 作製中にできた欠陥は空气中で 1 時間, 1173K の温度で加熱することで取り除いた. このような方法で作製した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  溶融体のかさ密度は理論密度 (3.43 g/cm<sup>3</sup> [1]) の約 97.5%であった. 粉碎した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  溶融体の X 線回折パターンから結晶構造は単斜晶系であることを確認した. 作製した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  溶融体から直径 10mm, 厚さ 1.0mm の円板を切り出し照射試料に用いた. 照射に用いた試料の断面の X 線回折パターンは (110) と (021) の面に関する優先方位を示した.

日本原子力研究所のタンデム加速器を用いて 80 MeV の酸素イオンと 160 MeV の Xe イオンを室温でこの  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  溶融体に照射した. 酸素イオンは  $1.4 \times 10^{20}$  /m<sup>2</sup> まで, Xe イオンは  $3.4 \times 10^{18}$  /m<sup>2</sup> まで照射した. 照射条件をもとに SRIM2000 [5] で計算した電子的阻止能 ( $S_e$ ) と核的阻止能 ( $S_n$ ) などの照射パラメータを Table 1 に示した. 計算の際, Li, Ti, O のはじき出しエネルギーを 40eV とした. Xe イオンを照射した場合の表面付近での  $S_e$  と  $S_n$  の値は 20.0 と 0.03keV/nm と見積もられた. O イオンを照射した場合の表面付近の  $S_e$  は Xe イオン照射の  $S_e$  の約 6%と小さく, O イオン照射の  $S_n$  も同じ程度に小さかった. Xe イオンを  $3.3 \times 10^{16}$  及び  $3.4 \times 10^{18}$  /m<sup>2</sup> まで照射したとき材料内に蓄積

Table 1  
Irradiation conditions of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$

Ion	Xe	O
E (MeV)	160	80
Fluence (/m <sup>2</sup> )	$3.3 \times 10^{16}$ , $3.4 \times 10^{18}$	$4.6 \times 10^{19}$ , $1.4 \times 10^{20}$
D (GGy)	0.03, 3.4	2.6, 8.0
$R_p$ ( $\mu\text{m}$ )	10	50
$S_n$ (keV/nm)	0.03	$2.0 \times 10^{-4}$
$S_e$ (keV/nm)	20.0	1.2

E: energy of ions, D: accumulated radiation dose,  $R_p$ : mean projected range,  $S_n$ : nuclear stopping power at near surface,  $S_e$ : electronic stopping power at near surface.

$R_p$ ,  $S_n$  and  $S_e$  are calculated with the SRIM2000 code [5].

する電子的エネルギーの量は表面付近でおおよそ 0.03 と 3.4 GGy であった.  $O$  イオンを  $4.6 \times 10^{19}$  及び  $1.4 \times 10^{20} / m^2$  まで照射した場合に蓄積する電子的エネルギーの量は表面付近で約 2.6 と 8.0 GGy であった.

このような条件で照射した試料の構造変化を X 線回折法によって調べた. X 線回折の測定中は非照射領域からの回折信号は  $8 \times 5 mm$  四方の穴の開いた厚さ  $10 \mu m$  の金箔で照射試料を覆うことで除去した. また, 照射試料の回折ピーク強度は金箔の回折ピーク強度を基準に正規化した.

### 3. 結果及び考察

岩塩型構造で知られる  $Li_2TiO_3$  の陽イオンは八面体配位の位置を占めている.  $Li_2TiO_3$  のこのような結晶構造の無秩序化は, スーパーセル, 即ち陽イオンの秩序だった構造に対応している X 線回折ピークの消失から知ることができる [6, 7]. このスーパーセルの回折ピークの消失は陽イオンを配した長範囲構造の無秩序化を意味している.

80 MeV の  $O$  イオンと 160 MeV の  $Xe$  イオンを照射した試料の X 線回折パターンの変化を  $2\theta = 19^\circ \sim 25^\circ$  の範囲で Fig. 1 に示した. また, Fig. 2 は (021) 面の回折強度の変化を照射によって材料内に蓄積した電子的エネルギー量に対してプロットしている. 酸素イオン照射の場合, (110) と (021) 面の回折ピークは照射量とともに徐々に減少している様子が観察された. また, (020) と (111) 面の回折ピークは  $4.6 \times 10^{19} / m^2$  までの照射で消失した. 一方, これらの回折ピークは約  $10^{16} / m^2$  程度の  $Xe$  イオン照射, すなわち 0.03 GGy の電子的エネルギーの蓄積量で

ほぼ完全に消失してしまった. このような X 線回折ピークの減少は照射領域での長範囲構造の無秩序化を意味する. そして, この無秩序化は照射による  $Li^+$  イオンの移動によって生じたものと考えられる. なぜなら,  $Li^+$  イオンは (110) 面と (021) 面上に存在し, かつ,

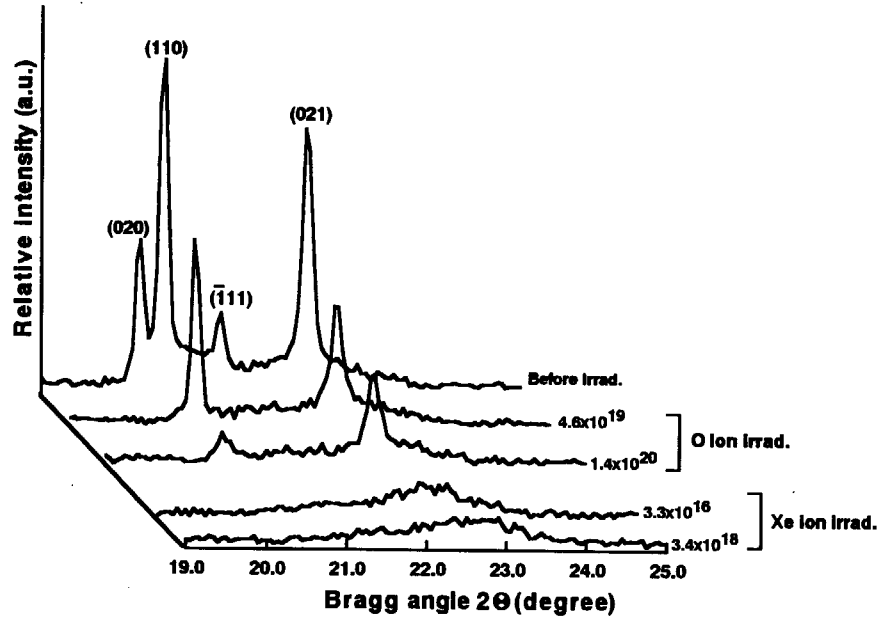


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of  $Li_2TiO_3$  irradiated with the 80 MeV  $O$  and 160 MeV  $Xe$  ions, and of  $Li_2TiO_3$  before irradiation. Numerical values stand for ion fluences in units of  $/m^2$ . Figures in parentheses are diffraction indexes.

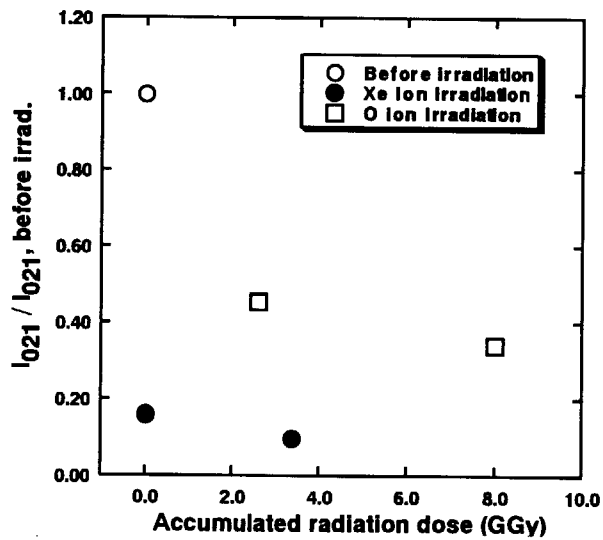


Fig. 2. Changes of X-ray diffraction peak intensities due to irradiation, plotted against accumulated radiation dose.



照射によって簡単に移動しやすいことが知られているからである [8].

さらに、観察された長範囲構造の無秩序化の程度は電子的阻止能( $S_e$ )に関連していると考えられる。照射した試料の X 線回折ピークの減少は長範囲構造の無秩序化が照射した試料表面領域で起きていることを示した。O イオンを照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  では長範囲構造の無秩序化が照射量及電子的エネルギーの蓄積量の増加とともに徐々に起ることを X 線回折による実験結果は示した。一方、O イオン照射の照射量や電子的エネルギーの蓄積量に比べてかなり少ない量の Xe イオン照射によって O イオンを照射したとき以上のかなり激しい無秩序化が起きることが X 線回折パターンからわかった。また、これらの実験結果は照射量や電子的エネルギーの蓄積量では照射に起因したこの回折ピークの減少を十分に説明できないことを示している。一方、Xe イオンを照射したときの  $S_e$  は酸素イオンを照射したときの  $S_e$  の約 17 倍と大きい (Table 1 参照)。このような結果を考慮すると、照射に起因した長範囲構造の無秩序化は照射量や電子的エネルギーの蓄積量ではなく  $S_e$  と密接に関連していると考えられる。また、今回の実験結果は 20.0keV/nm 以上の電子的阻止能を持ったイオンの照射によって  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  のあ徹底した無秩序化は起きることを示している。一方、核的阻止能( $S_n$ )は 0.1dpa よりかなり小さいはじき出し量を生成するだけであり、この値は照射領域での無秩序化を起こすには小さいすぎる。

#### 4. 結論

X 線回折の結果は 160MeV の Xe イオンと 80MeV の O イオンで照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の表面領域での無秩序化を明らかにした。照射によって起る無秩序化の主な要因は入射したイオンの電子的阻止能によるものと考えられた。

160MeV の Xe イオンを照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  に対する X 線回折の測定結果は  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の長範囲構造の破壊の証拠となった。これとは対照的に 80MeV の O イオンを照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の構造の破壊は照射量や蓄積する電子的エネルギーの量が Xe イオン照射に比べて多いにもかかわらず十分なものではなかった。Xe イオン照射の電子的阻止能が O イオン照射のそれより約 17 倍大きいことから  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  構造の破壊を生み出した徹底した無秩序化は入射したイオンの電子的阻止能と関連していると考えられる。

#### 参考文献

- [1] P. Gierszewski, Review of properties of lithium metatitanate, Report no. CFFTP G-9561, 1995.
- [2] K. Moritani and H. Moriyama, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 525.
- [3] V. Grismanovs, T. Tanifuji, T. Nakazawa, D. Yamaki and K. Noda, Fusion Technol. 1-2 (1998) 1183.
- [4] T. Nakazawa, V. Grismanovs, D. Yamaki, Y. Katano, T. Aruga and A. Iwamoto, 2000 Int. Conf. on Ion Implantation Technology Proc. (2000) 753.
- [5] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon, Oxford, 1985.
- [6] L. Baños, M.E. Villafuerte-Castrejón, R. Valenzuela and A.R. West, J. Chem. Soc. Faraday Trans. 86 (1990) 2979.
- [7] M. Castellanos and A.R. West, J. Mater. Sci. 14 (1979) 450.
- [8] K. Noda, T. Nakazawa, Y. Ishii, K. Fukai, H. Matsui, D. Vollath and H. Watanabe, Mater. Trans., JIM 34 (1993) 1150.



### 3.4.11 ナノクリスタルにおける照射欠陥の観察

大塚 英男<sup>1</sup>、須貝 宏行、北條 喜一

#### Observation of Radiation Damage in Nanocrystalline

H.OHTSUKA, H.SUGAI, H.HOJOU

この研究は、放射線の照射に遭っても発生する損傷が従来の材料より少ない（耐照射性を持つ）新しい材料の開発を目的としている。これまで微粒子単体において、耐照射性の基礎となる現象を観察してきた。今回は、微粒子を集積させたナノクリスタル材においても、同様の特性を観察したので報告する。

粒界の近傍では欠陥集合体のほとんど無い領域が存在することが従来観察されていた。これは、そこでは粒界に達して消滅する欠陥要素が多いので、クラスターの形成ができにくいからと理解されている。この事実をヒントに、その欠陥の無い領域に相当するサイズの結晶からなる材料（ナノクリスタル）を作って、照射があっても欠陥のほとんど無い状態が保たれることを実証することが本研究のテーマである。すなわち新しい耐照射性材料の開発となる。

これまでは微粒子単体を対象にして、透過型電子顕微鏡を用いて内部の欠陥生成を直接観察してきた。同時に、拡散律則による点欠陥のクラスター化をシミュレーションする計算プログラムを開発し、観察結果と照らし合わせた。これらの結果を踏まえて、ナノクリスタルにおいては欠陥集合体の形成は点欠陥の拡散によって支配されている（拡散律則）現象であることが明らかにした。このことは、照射による欠陥集合体の生成は、ナノクリスタルにおいては抑制可能であることを意味している。

次のステップとして微粒子を集積させたものを作り、材料の観点で上述の結果を実証することを目標とした。これは、応用（実用化）に向けては必須の過程と考えている。材料中の照射損傷の一つの評価法として、ここではX線回折を採用した。

その理由としては

- ①重イオンビームの浸透深さ（レンジ）とX線のそれがほぼ同じである
- ②その深さ（10  $\mu\text{m}$ 程度）くらいあれば材料の評価としてよいであろう
- ③非破壊検査であり将来的にも有望
- ④単結晶試料においては測定の経験を有している

超微粒子からなる材料であるので粉末X線回折法を適用することになるが、照射欠陥への適用は前例が無いので、有意なデータが取得出来るかどうかの確認からスタートとなる。ナノクリスタルを集積させたものにタンデムのビームを照射し、照射前と後のX線回折プロファイル（ $\theta - 2\theta$ ）の変化を求めた。

---

<sup>1</sup> e-mail: ohtsuka@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

実験では銅の微粒子（直径 50nm）を集積したものを試料とし、100MeV の X e を  $\sim 1.5E15$  ions/cm<sup>2</sup> 照射した。結果を図 1 に示す。

**散乱プロファイルの特徴：**図 1 の(a)-(b)は同一試料上での異なる反射面でのプロファイルを示す。照射によりプロファイルの幅が増大するのが共通であるが、高角において散乱プロファイルの非対称性が顕著となる。これが今回の一連の観察における特徴である。

**温度の効果：**図(b)-(c)において照射温度の効果を示す。温度の上昇は点欠陥の拡散係数を増大させることに相当。結果は測定精度の範囲以内ではプロファイルの変化（損傷の度合いに相当）が無くなった。欠陥のクラスター化がほとんど妨げられた模様。

**サイズ効果：**図(b)-(d)に要素粒子のサイズ依存性を示す。(b)の平均粒径は(d)のその半分である。粒径を小さくするとプロファイルの変化が少なくなることが示されている。

これらの結果は、単一粒子で見た耐照射性の特徴と定性的には同一のものである。

特徴的散乱プロファイルを発現している欠陥集合体がどのタイプであるかは現在解析中。

### まとめ

前期の微粒子単体を対象にした観察、今期の微粒子を集積させた材料としての扱いでの観察、一連の研究の結果、ナノクリスタルの耐照射性を基礎的なところでは実証できたと考える。予算的には何の位置づけもない超マイナーなテーマであるにもかかわらず、望外の結果が得られたのは、ひとえにタンデム施設からのサポートの故でありますので、ここに謝意を表します。

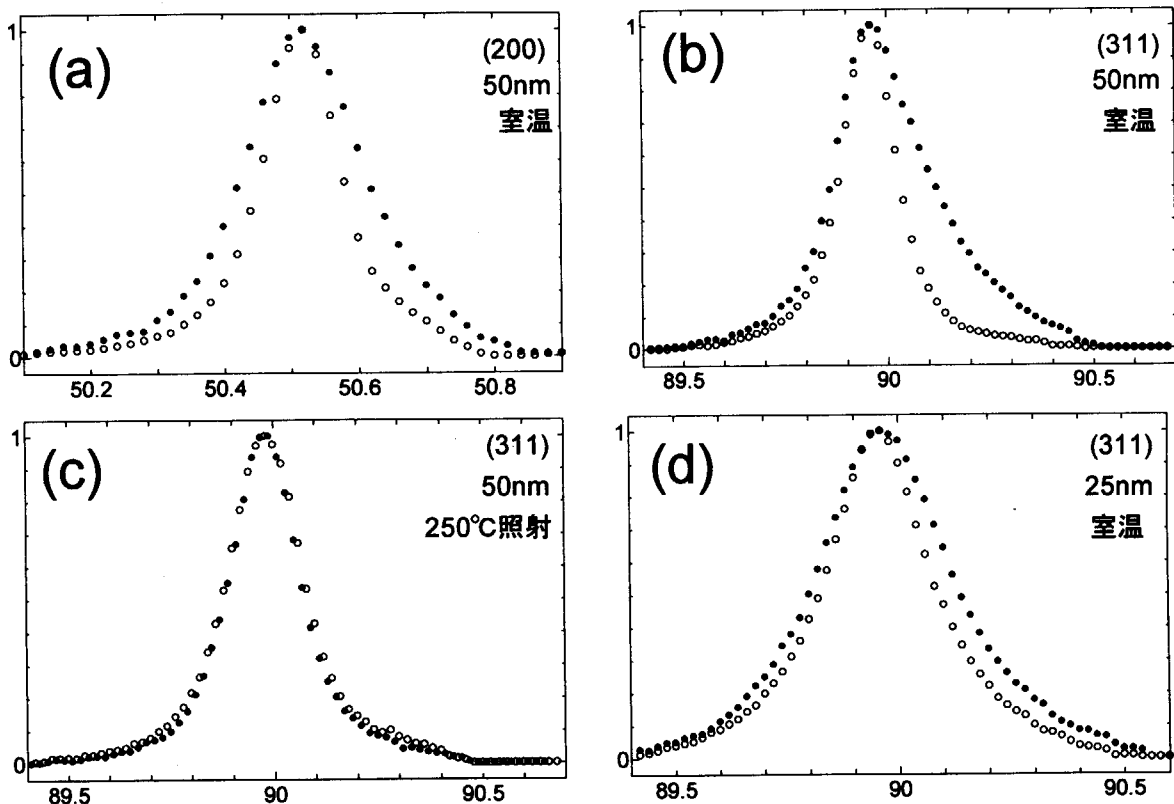


図 1 X線回折計による観察結果 Bragg ピークまわりの  $\theta$ - $2\theta$  スキャン。見やすいようにピークは合わせてある。○は照射前、●は照射後に対応。(a)-(b)では同一試料で反射面依存性を見る。(b),(c),(d)は同じ反射面にて異なる条件の依存性を見る：(b)-(c)の対比は照射温度の依存性、(b)-(d)の対比は要素である微粒子の粒径の依存性。



3.4.12  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  高温超伝導体の  
重イオン照射効果及びアニール効果  
HEAVY ION IRRADIATION EFFECTS AND ANNEALING EFFECTS  
IN  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  HIGH-Tc SUPERCONDUCTORS

広瀬篤志<sup>1,2</sup>, 岩瀬彰宏<sup>1</sup>, 石川法人<sup>1</sup>, 知見康弘<sup>1</sup>,  
橋本健男<sup>2</sup>, 佐藤浩行<sup>1,2</sup>, 道上修<sup>2</sup>

A. HIROSE<sup>1,2</sup>, A. IWASE<sup>1</sup>, N. ISHIKAWA<sup>1</sup>, Y. CHIMI<sup>1</sup>, T. HASHIMOTO<sup>2</sup>, H. SATO<sup>1,2</sup>, and  
O. MICHIKAMI<sup>2</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部; <sup>2</sup>岩手大学工学部

<sup>1</sup>Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research  
Institute (JAERI); <sup>2</sup>Faculty of Engineering, Iwate University

高温超伝導体において、臨界電流密度を上昇させるためには、有効な（ピンング力の強い）ピンングセンターを超伝導体内に導入する必要がある。高エネルギーイオン照射を行うと、イオン1個1個がそれぞれの軌跡に沿って柱状欠陥を生成し、それらが理想的なピンングセンターとして働く。しかし、照射濃度が増加すると、臨界温度  $T_c$  自体が劣化するという問題が生じてしまう。特に  $T_c$  付近の高温領域において、臨界電流密度  $J_c$  を低下させる方向に働いてしまう。高温超伝導体の最大の利点は、高い環境温度においても超伝導を実現できる点にあり、高温における  $J_c$  の低下は避けたい。 $J_c$  を向上させるには、柱状欠陥の構造を残しつつ、matrix を回復させる構造制御が不可欠である。これまでの研究より、高エネルギー重イオン照射によって生成された柱状欠陥は、アモルファス領域と熱的に不安定な領域 (softly damage region) により構成されていることが分かっている[1,2]。そこで、輸送特性を向上させる上で重要となるアモルファス領域を残しつつ、熱処理、即ち活性化酸素アニーリング (Activate Oxygen Plasma: AOP) により、softly damage region のみを回復させることで、理想的なピンングセンターを有する超伝導体に改質することが期待できる[2]。以上の認識の上に立ち、高エネルギーイオン照射と AOP を組み合わせることにより、 $J_c$  を向上させる可能性について検証した。

DC マグネトロンスパッタリング法により、MgO 基板の上に  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  薄膜を堆積させた後、エッチングを施すことにより  $J_c$  測定用サンプルを作成した。1枚の基板上に2個のブリッジパターンを作成した。基板上的2個のブリッジパターンをそれぞれ sample1、sample2 とし、sample2 を照射用試料、sample1 を sample2 のリファレンス用試料として使用した。 $J-E$  特性（電流電圧特性）の測定は、磁場を 1T、2T、3T、測定温度を 89K から 70K まで 1K 刻みに変化させて行った。測定後、それぞれの測定条件における  $J_c$  を、測定結果より求めた。高エネルギー重イオン照射の際には、基板を両面テープでアルミのサンプルホルダーに固定するが、先述の通り sample2 にのみ照射し sample1 は未照射とするため、sample1 をアルミ板で覆い高エネルギー重イオンが照射されないようにした。イオン照射は、試料の法線方向、即ち c 軸に平行な方向から東海研究所 Tandem 加速器によって、200MeV の Au イオン照射を  $5 \times 10^{10}$  [ions/cm<sup>2</sup>] の照射量で行った。200MeV の Au イオンの飛程は約 10.59 $\mu\text{m}$  であり、試料の厚さが 3000Å (0.3 $\mu\text{m}$ ) なので、入射イオンは試料内に残らず、イオンの通過による照射効果は照射の厚さ方向にはほぼ均一である。照射後のアニール効果を調べるために、高エネルギー重イオン照射後の両試料 (sample1 は照射雰囲気中に置かれていたものの未照射) を基板温度  $T_{\text{set}}=550^\circ\text{C}$ 、スパッタ雰囲気 7Pa (Ar+7.5%O<sub>2</sub>) の条件下で 45 分間熱処理した後、2kPa の純酸素を導入し、自然冷却を行った。

イオン照射前の sample1 及び sample2 の抵抗温度特性より求めた  $T_{\text{cmd}}$  は、sample1 と sample2 でほぼ同じ

値を示した(表1)。また、照射前の1T、2T、3Tの各磁場における sample1 及び sample2 の  $J_c$  の特性は、同様の傾向を示した。照射後の sample1 及び sample2 の抵抗温度特性より求めた  $T_{cmd}$  は、ほとんどの試料は照射前と比べて sample1 がほぼ同じ値を示し、sample2 が 2K 程度低下した。照射後の外部磁場 1T、2T、3T における sample2 の臨界電流密度を用いて規格化した  $J_c$  の特性は、図1のようになる。臨界電流密度を用いて規格化すると、sample1 の  $J_c$  は全温度領域においてほぼ同じ傾向の  $J_c$  特性を示しており、照射の前後において特性に大きな変化は無い。これは、照射雰囲気中に存在していただけで、イオンが照射されず損傷を受けなかったことを示しており、リファレンス用試料の結果から sample2 のデータ補正は必要ないことが分かる。一方、照射後の sample2 は、照射前に比べ照射後が明らかに  $T_c$ 、 $J_c$  共に低下していることが分かる。図1より、87K 前後の温度領域において未照射 (as-grown) のデータを程度の差こそあれ下まわり、85K 以下の温度領域では照射前の  $J_c$  へと近付いていく傾向を示し、70K 付近では照射前の  $J_c$  と同等、或いはわずかに上回ることがわかった。このことから、より低温の温度領域においては、 $J_c$  が更に増加していくことが期待できる。

AOP アニール後の sample1 及び sample2 の抵抗温度特性より求められた  $T_{cmd}$  は、sample1、sample2 共に 90K 以上を示した(表1)。この結果により、照射損傷を与えた sample2 は、照射損傷の無い sample1 と同等の  $T_{cmd}$  を持つまで AOP アニールにより回復したことが分かる。アニール後の外部磁場 1T、2T、3T における sample1 及び sample2 の  $J_c$  の特性について、以下に述べる。臨界電流密度を用いて規格化 ( $J_c/J_{c0}$ ) すると、sample1 の  $J_c$  は全温度領域において未照射 (as-grown) のデータを上回っているものの、ほぼ同じ傾向の  $J_c$  特性を示しているといえる。これは、sample1 が照射雰囲気中に存在していただけであり、イオンによる照射損傷を受けなかったため、アニールを施すことにより、最適な状態に回復したものと考えられる。一方、照射後の sample2 は、照射前の  $J_c$  に比べアニール後の  $J_c$  が明らかに上昇し、アニール後の  $J_c$  の値は、ほとんどの温度領域において未照射 (as-grown) の  $J_c$  の値を 2 倍以上も上回っていることが、図1より分かる。これは、超伝導体薄膜のように、元々欠陥が多く、それ故元々  $J_c$  がたいへん高いサンプルであっても、イオン照射とアニールを組み合わせることにより、 $J_c$  を更に 2 倍程度も上昇させることを示す。この照射後アニールという手段を応用に利用する場合、どの程度の範囲で磁場が超伝導体に印加されるのかを見極め、それに見合った照射量を決定することで、より安定した電流の供給を実現できることがわかったといえる。

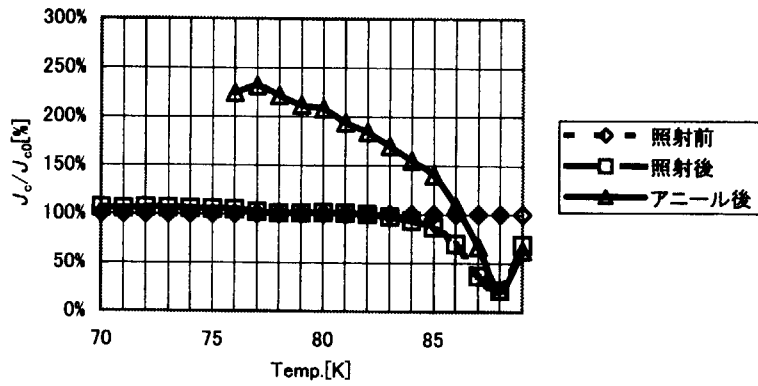
## References

- [1] N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana, T. Kambara, *J. Phys. Soc. Jpn* 69 (2000) 3563.
- [2] H. Sato, N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, T. Hashimoto, O. Michikami, *Physica C* 378-381 (2002) 527, and references therein.

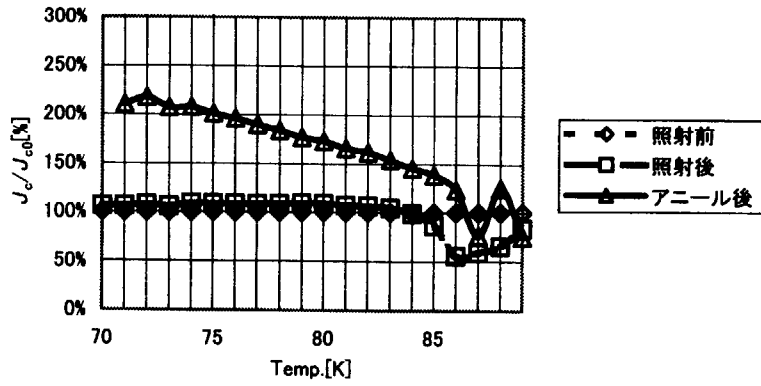
表1 照射量  $5 \times 10^{10}$  [ions/cm<sup>2</sup>] 時の照射前後とアニール後の  $T_c$ 、 $R_{room}$ 、 $T_g$  相関関係

		照射前	照射後	アニール後
$T_c$ [K]	sample1	90.68	90.71	91.09
	sample2	90.69	90.18	90.32
$R_{room}$ [ $\Omega$ ]	sample1	70.43	70.85	81.56
	sample2	73.48	78.56	85.98
$T_g$ [K]	1T sample1	87.5	87.5	87.5
	1T sample2	87.5	87.5	87.5
	2T sample1	84.5	85.5	85.5
	2T sample2	85.5	85.5	85.5
	3T sample1	83.5	81.5	83.5
	3T sample2	83.5	83.5	84.5

07 1T sample2(照射量=5×10<sup>10</sup>[ions/cm<sup>2</sup>])



07 2T sample2(照射量=5×10<sup>10</sup>[ions/cm<sup>2</sup>])



07 3T sample2(照射量=5×10<sup>10</sup>[ions/cm<sup>2</sup>])

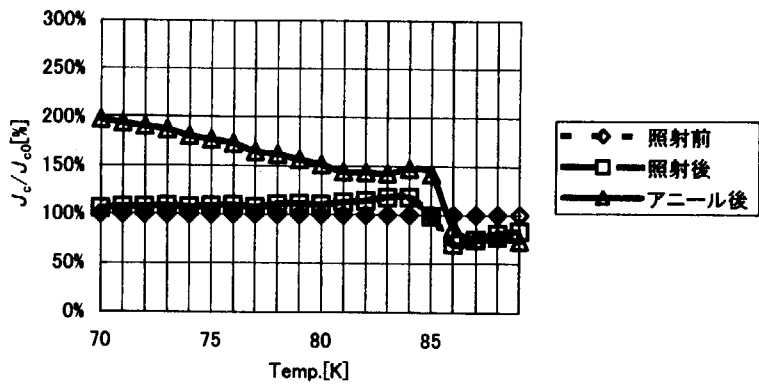


図1  $J_{c0}$ を用いて規格化した  $J_c$ の温度依存性 (外部磁場=1-3T、照射量  $5 \times 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>)



### 3.4.13 Irradiation effects on Yttria-stabilized ZrO<sub>2</sub> irradiated with neon ions and high energy iodine ions

K. Hojou<sup>1)</sup>, T. Hojo<sup>2)</sup>, J. Aihara<sup>4)</sup>, S. Furuno<sup>1)</sup>, N. Nitani<sup>3)</sup>, T. Yamashita<sup>3)</sup>, M. Ishihara<sup>4)</sup>,  
K. Minato<sup>1)</sup> and T. Sakuma<sup>2)</sup>

- 1) Dept. of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Ibaraki, 319-1195 Japan
- 2) Dept. of Science, Univ. of Ibaraki, Bunkyo-cho 2-1-1, Ibaraki, 310-0056 Japan
- 3) Dept. of Energy System, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Ibaraki, 319-1195 Japan
- 4) Dept. of Advanced Nucl. Heat Technol., Japan Atomic Energy Research Institute, Oarai-machi, Ibaraki, 311-1394 Japan

#### Abstract

In situ TEM observation was performed on yttria stabilized zirconia during 30 keV Ne<sup>+</sup> ion irradiation at room temperature. In the irradiation at room temperature defect clusters and bubbles were formed homogeneously at random, and defect clusters were formed earlier than bubbles. Cross sectional TEM observation for yttria stabilized zirconia irradiated with 128 MeV I<sup>10+</sup> ions revealed that damages were formed in the whole regions over the ion range, especially even in the vicinity of ion incident surface.

#### 1. Introduction

Yttria stabilized cubic ZrO<sub>2</sub> (YSZ) is considered as principal candidate materials for rock-like fuels because of their high radiation stability. No amorphization was observed in YSZ under neutron or ion irradiation to a high damage level, even under extreme conditions such as high energy (1.5 MeV) Xe ion at low temperature (20 K) [1-5]. Concerning the volume swelling, YSZ showed negligible swelling under fast neutron irradiation [6-7]. On the other hand, in ion irradiation volume swelling due to bubble formation was observed, resulting in up to 4%, though it depended on irradiation temperature and fluence [3]. Very limited information is available, however, for swelling of stabilized zirconia due to ion irradiation. For estimating the radiation stability produced by fission products or  $\alpha$ -decay, we have studied radiation damage in stabilized zirconia under He or Xe ion irradiations in a transmission electron microscope (TEM) and showed no amorphization and volume swelling due to bubble formation by Xe ion irradiations [3, 5]. These studies focused on studies of irradiation by neutrons, light ions (He) or heavy ions (for example, Xe). Nothing is known, however, for studies of irradiation with ions with medium weight, while fission products are in wide range of atomic mass. Therefore, studies of irradiation with ions with medium weight are interesting from the fundamental viewpoints.

In this study, 30 keV Ne<sup>+</sup> ions were used. Energy of ions was decided so as to stop large part of implanted ions within the thickness of several tens nm which is typical thickness for TEM observation. Displacement damage also occurs within this thickness. That is, we aim at the observation of efficient damage evolution with synergistic irradiation effects under the condition where implanted atoms and formed point defects such as interstitials and vacancies exist together.

We irradiated stabilized zirconia with 128 MeV I<sup>10+</sup> to a fluence of  $1 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> at room temperature using tandem accelerator and damage morphology was observed by cross sectional TEM observation method.

#### 2. Experiments

Yttria-stabilized cubic zirconia specimens containing 21 % mol of yttria were used in this

study. The specimens suitable for transmission electron microscope (TEM) observation were prepared as follows. Disks with 3 mm diameter were cut off from wafers of 0.2 mm thickness using ultrasonic cutter. Such disks were then dimpled in the center part to the thickness of 30  $\mu\text{m}$ . Perforation was achieved in the center part of disks by 5 keV  $\text{Ar}^+$  ion milling with an incident angle of  $20^\circ$  to the surface of disks. Final thinning was performed with 2 keV  $\text{Ar}^+$  ions at an incident angle of  $15^\circ$ . All thinning was done at ambient temperature. Ion thinned disks were annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 5 hours in air.

Irradiations and in situ observations were performed in JEM-2000F TEM coupled directly to 40 kV ion accelerator. In this instrument ion beam was incident to the specimen surface at an angle of  $60^\circ$ . Used ion species were 30 keV  $\text{Ne}^+$  ion at a flux of  $5 \times 10^{13}$  ions/ $\text{cm}^2\text{s}$ . Irradiations were performed at room temperature. For these irradiation conditions, the average range and damage peak depth of 30 keV  $\text{Ne}^+$  ion were estimated by TRIM calculation. Average range and depth of peak damage are 29 nm and 18 nm, respectively, using a density of  $5.48 \text{ g/cm}^3$ .

128 MeV  $\text{I}^{10+}$  ion irradiation at room temperature was performed to the mirror polished surface of bulk YSZ specimen using JAERI tandem accelerator. Ion fluence was  $1 \times 10^{14}$  ions/ $\text{cm}^2$ . After irradiation thin specimen suitable for cross sectional TEM observation was prepared by mechanically cutting off in the perpendicular direction to the specimen surface, pasting surface to surface with epoxy resin and ion thinning. Specimen temperature was kept to be 473 K during TEM observation so as to induce electric conductivity into insulator YSZ specimen, to avoid image disturbance due to electric resistivity of specimen.

### 3. Results and discussions

#### 3.1. Damage evolution by 30 keV $\text{Ne}^+$ ion irradiation

Fig. 1 shows sequential electron micrographs of damage evolution in stabilized zirconia irradiated with 30 keV  $\text{Ne}^+$  ions with a flux of  $5 \times 10^{13}$  ions/ $\text{cm}^2\text{s}$  at room temperature. Tiny defect clusters were observed as dot contrast at a fluence of  $1.5 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ , as shown in Fig. 1 (a). Its size increased gradually with the increasing fluence and turned to dislocation loops after the fluence of  $6 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ . And then dislocation loops overlapped and tangled after the fluence of  $1.5 \times 10^{16}$  ions/ $\text{cm}^2$ . Bubbles were observed at a fluence of  $6 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ , as shown in Fig. 1 (d).

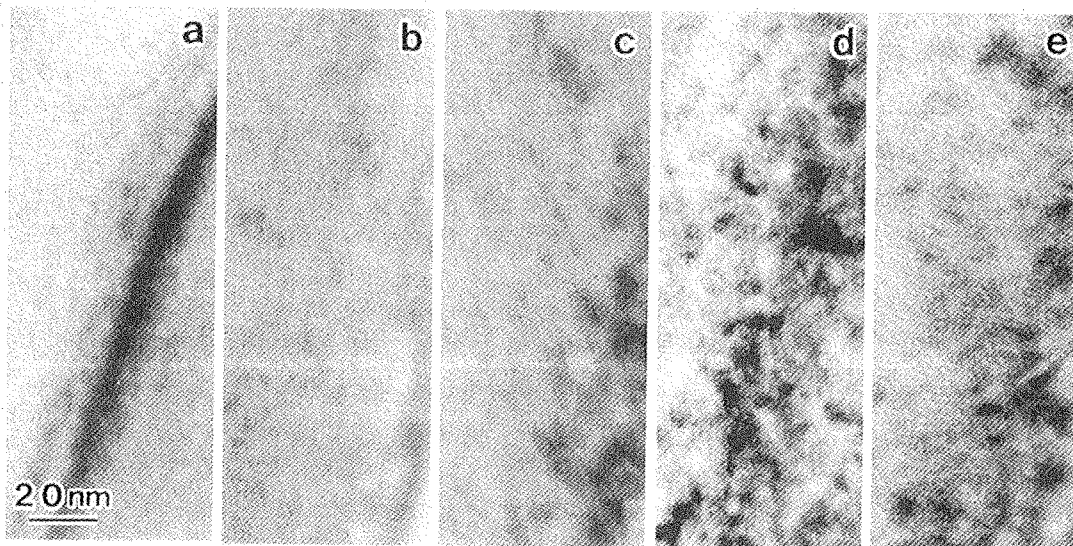


Fig. 1 Sequential electron micrographs showing the damage evolution of YSZ during irradiation with 30 keV  $\text{Ne}^+$  ions of  $5 \times 10^{13}$  ions/ $\text{cm}^2\text{s}$  at room temperature.

(a)  $1.5 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ , (b)  $3 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ , (c)  $6 \times 10^{15}$  ions/ $\text{cm}^2$ , (d)  $1.5 \times 10^{16}$  ions/ $\text{cm}^2$ , (e)  $3 \times 10^{16}$  ions/ $\text{cm}^2$ .



The bubble grew a little to a fluence of  $3 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>. Its diameters were 1.5 nm at maximum. In the specimen irradiated at room temperature bubbles were formed later than dislocation loops.

In the irradiation at low temperature such as room temperature, defect clusters were formed earlier than bubbles in the early stage of irradiation, as shown in Fig. 1 (a-c). Mobility of interstitial is much larger than that of vacancy. These interstitials combine and cluster smoothly, and these clusters turn to dislocation loops in early stage of irradiation. Growing dislocation loops act as efficient sinks for interstitials and suppress density of interstitials. Excess vacancies in the vicinity of dislocation loops aggregate easily and lead to bubble formation by trapping gas atoms. At low temperature, however, mobility of point defects such as interstitials is low, compared with that at high temperature. This results in fall of growth speed of defect clusters in the irradiation at low temperature. Slowly growing dislocation loops act as weak sinks for interstitials and suppress barely density of interstitials. In the neighborhood of already formed defect clusters, another defect cluster may be newly formed, resulting in homogeneous formation of defect clusters.

### 3.2. Damage by 128 MeV I<sup>10+</sup> ion irradiation

Cross sectional TEM observation for YSZ irradiated with 128 MeV I<sup>10+</sup> ions revealed that damages were formed in the whole regions over the ion range, as shown in photographs. Fig. 2 (a) is wide region of the specimen. Both sides of crack indicated with arrow f at the upper left of picture are the ion incident surface of the irradiated specimen, because the specimen are pasted face to face in the process of cross sectional specimen preparation. Area shown by arrow d is enlarged in Fig. 2 (b) and arrow e is in Fig. 2 (c). Fig. 2 (b) is damage formed in the region near the ion incident surface. The lower frontier of specimen in picture is ion incident surface. Fig. 2 (c) is damage formed in the region of the end of ion range. The ion incident surface is located upward at about 20  $\mu\text{m}$  apart from this picture. Defect clusters of 1 to 2 nm in diameter were formed in the region near the end of ion range, as shown in Fig. 2. (c). On the contrary, bubbles were not observed under this irradiation condition.

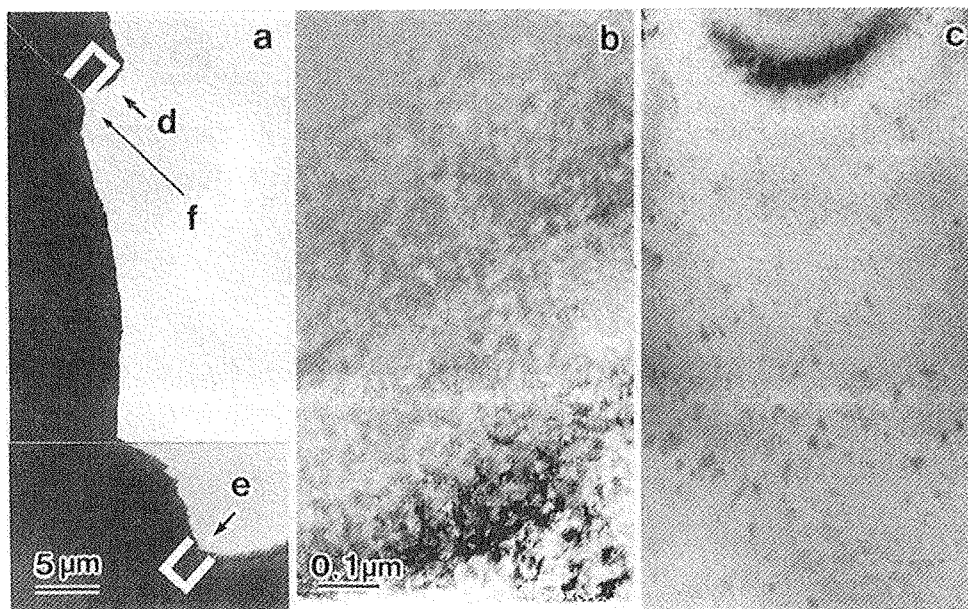


Fig. 2 Cross sectional TEM images of stabilized zirconia irradiated with 128 MeV I<sup>10+</sup> ions to a fluence of  $1 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> at room temperature.

About such a damage formation with high energy heavy ions observed in this experiment, we think as follows: It is shown that there is contribution by atomic collision as well as electron excitation in high energy region, from TEM observation on columnar defects in high temperature superconductor formed by high energy heavy ion irradiation [8]. It is impossible to neglect possibility of the damage formation by atomic collision from the configuration of observed defect clusters. On the other hand, high energy ions form tracks in the high electric resistivity materials by thermal spike with electron excitation. Though zirconia was high electric resistivity materials, high energy ion tracks were not observed in this experiment.

## 5. Summary

Results obtained in these studies are summarized as follows.

In the specimen irradiated with 30 keV Ne<sup>+</sup> ions at room temperature, defect clusters are formed earlier than bubbles and they formed homogeneously.

In the case of irradiation with 128 MeV I<sup>10+</sup> ions, damages are formed in the whole regions over the ion range. Especially they are formed even in the vicinity of ion incident surface.

## 6. References

- [1] E. L. Fleischer, M. G. Norton, M. A. Zaleski, W. Hertl, C. B. Carter, J. W. Mayer, *J. Mater. Res.* **6** (1991) 1905.
- [2] N. Yu, K. E. Sickafus, P. Kodali, M. Nastasi, *J. Nucl. Mater.* **244** (1997) 266.
- [3] N. Sasajima, T. Matsui, K. Hojou, S. Furuno, H. Otsu, K. Izui, T. Muromura, *Nucl. Instr. and Meth. B* **141** (1998) 487.
- [4] K. E. Sickafus, H. Matzke, K. Yasuda, P. Chodak, III, R. A. Verrall, P. G. Lucuta, H. R. Andrew, A. Turos, R. Fromknecht, N. P. Baker, *Instr. and Meth. B* **141** (1998) 358.
- [5] C. Degueldre, P. Heimgartner, G. Ledergerber, N. Sasajima, K. Hojou, T. Muromura, L. Wang, W. Gong, R. Ewing, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **439** (1997) 625.
- [6] F. W. Clinard Jr., G. F. Hurley, L. W. Hobbs, *J. Nucl. Mater.* **108/109** (1982) 655.
- [7] F. W. Clinard Jr., D. L. Rohr, W. A. Ranken, *J. Am. Ceram. Soc.* **60** (1977) 287.
- [8] M. Sasase, K. Hojou, S. Furuno, H. Yamamoto, K. Izui, S. Okayasu, *J. Electron Microsc.*, (2003) to be publish.



3.4.14 核分裂片照射効果を模擬した  $\text{CeO}_2$  への高エネルギーイオン・電子照射試験  
**RADIATION EFFECTS IN  $\text{CeO}_2$  UNDER HIGH ENERGY ION AND ELECTRON IRRADIATION  
 AS SIMULATIONS OF FISSION FIELD IN NUCLEAR FUELS**

園田 健<sup>1</sup>, 木下幹康<sup>1</sup>, 知見康弘<sup>2</sup>, 石川法人<sup>2</sup>, 岩瀬彰宏<sup>2</sup>, 安田和弘<sup>3</sup>

T. SONODA<sup>1</sup>, M. KINOSHITA<sup>1</sup>, Y. CHIMI<sup>2</sup>, N. ISHIKAWA<sup>2</sup>, A. IWASE<sup>2</sup> and K. YASUDA<sup>3</sup>

<sup>1</sup>(財)電力中央研究所 狛江研究所 原子力システム部;

<sup>2</sup>日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部; <sup>3</sup>九州大学工学部

<sup>1</sup>Nuclear Energy Systems Department, Komae Research Lab., Central Research Institute of Electric Power Industry; <sup>2</sup>Department of Materials Science, Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI); <sup>3</sup>Faculty of Engineering, Kyushu University

近年の電力自由化と原子力発電の安全性に対する信頼回復の流れに伴い、原子力発電にはより一層の経済性および安全性の確保が求められている。特に経済性を向上させる手法の一つとして軽水炉燃焼の高燃焼度化が世界的に推し進められつつあるが、この高燃焼度化を進めるには、高燃焼度時に発生する「リム組織」<sup>[1-2]</sup>の形成・成長機構の解明が必要不可欠である。この機構解明には、燃料中で継続的に発生する現象、即ち核分裂による照射損傷と核分裂生成物の蓄積、そして高エネルギー核分裂片による局所的な電子励起効果、等の多くの知見の蓄積が必要であると考えられる。しかし現在まで十分な知見は報告されていない。一方、以上の素過程を“分離観察”する有効な手段として加速器を用いた模擬照射試験が挙げられる。そこで本研究では、 $\text{UO}_2$  模擬物質であり、またイナートマトリックスの候補材でもある  $\text{CeO}_2$  結晶に、東海タンデム加速器を用いたイオン照射試験と超高压電子顕微鏡を用いた電子照射試験を行い、 $\text{CeO}_2$  結晶中の微細組織に及ぼす高エネルギー電子励起効果について知見を得た。

試料は (株) レアメタリック社製の 99.99 %の純  $\text{CeO}_2$  粉末を用い、焼結する事でバルク  $\text{CeO}_2$  試料を得た。焼結条件は、焼結雰囲気：大気、焼結温度：1400℃で、8 時間昇温→8 時間保持→8 時間降温の温度設定にて焼結を行った。電子顕微鏡用薄膜試料として GATAN 社製イオンミリング装置を用いた楔形薄膜試料と、FIB(Focused Ion Beam)<sup>[3]</sup>法を用いた TEM 用断面試料を作成した。以上の試料に、東海タンデム加速器を用いて代表的な核分裂片である Xe, I, Zr イオンを核分裂エネルギー以上の照射エネルギー(70~210 MeV)にて照射し、また九州大学にある超高压電子顕微鏡を用いて 1 MeV の電子照射を行った。イオン照射試料については電中研の 300 kV FE-TEM (HF-3000)と 200kV TEM (JEM-200CX)を用いて微細組織観察を行い、また電子照射に関しては超高压電子顕微鏡内にて「その場」観察を行った。

図 1 にイオン照射により発生するイオントラックの代表的な明視野像を示す。このイオントラックの直径はイオン種及びその照射エネルギーによって変化し、210 MeV  $\text{Xe}^{14+}$ : ~9.3 nm、100 MeV  $\text{Xe}^{10+}$ : ~7.9 nm、80 MeV  $\text{Xe}^{14+}$ : ~5.7 nm、80 MeV  $\text{I}^{7+}$ : ~5.1 nm、70 MeV  $\text{I}^{7+}$ : ~4.6 nm である事が測定された (図 2)。以上の結果より、核分裂反応にて発生する電子励起の影響範囲は約 5~7 nm φと推測できた。またトラック内部の高分解能観察を行い、トラック中心部において組織の乱れと歪み、転位の発生等が確認された。また、図 3 に 210 MeV Xe イオンを照射した場合のイオントラック重畳による微細組織変化を示す。図 2 よりこの場合のトラック平均直径は~9.3 nm と測定さ

れ、イオントラックが重畳を開始する照射量を概算すると約  $1.5 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup> となる。イオン照射が重畳する前は逆格子像の変化は観察されないのに対し、重畳後は逆格子像、即ち結晶構造に乱れが見られた。この現象と高分解能観察の結果より、イオントラック内の組織は微粒化または非晶質化が発生している事が明確になった。一方、FIB 法を用いて断面試料を作成し、電子励起による微細組織変化の照射深さ依存性を観測した。図 4 に 210 MeV Xe イオンを  $1 \times 10^{13}$  ions/cm<sup>2</sup> まで照射した試料の断面組織の代表的な明視野像を示す。これより TEM 用薄膜試料にて非晶質化の進行が確認された照射量 ( $>5 \times 10^{12}$  ions/cm<sup>2</sup>) にも関わらず、バルク試料から摘出した断面試料の試料表面近傍では結晶構造の乱れが観察されなかった。これはバルク効果と電子励起の効果による照射欠陥の回復が発生した可能性を示している。

また CeO<sub>2</sub> 結晶中での点欠陥蓄積過程と電子励起効果について知見を得るために 1000keV および 200 keV 電子照射試験を行った。1000 keV 電子照射では照射開始後に点欠陥集合体の密度が増加しリップコントラストを有した転位ループが形成されたが、200 keV 電子照射では照射直後に 100nm 程度のサイズまで成長し、ある割合で消滅するという大きなコントラストと、点欠陥集合体と思われる成長しないドットコントラストの二種類が観察された。CeO<sub>2</sub> 結晶における阻止能の電子エネルギー依存性の計算(図 5)<sup>[4]</sup>等から、この照射エネルギーによる損傷挙動の違いは結晶に付与される電子・格子励起効果の違いとそれによる照射誘起拡散の影響によると考察出来た。

今後は軽水炉燃料中で発生している照射挙動の基礎的な素過程をより正確に把握するために照射試料の断面観察・高分解能観察を行うと同時に、照射温度依存性などを調査する。最終的には、これら素過程の情報を踏まえて実際の燃料に近い系を加速器中で再現し、リム組織の再現を目指す。

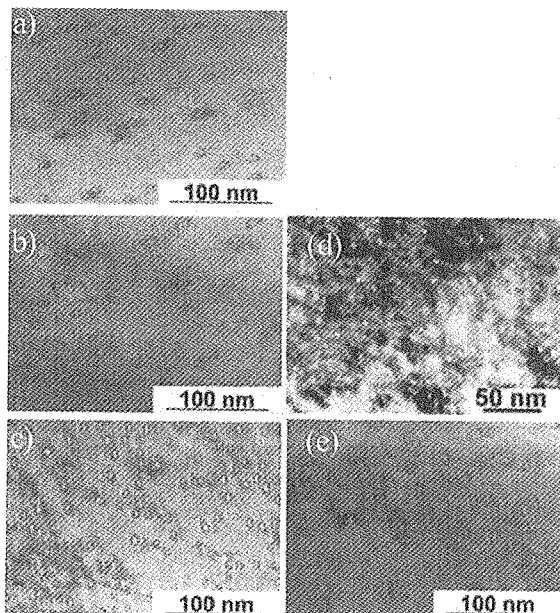


図 1. CeO<sub>2</sub> に(a) 210 MeV Xe, (b)100 MeV Xe, (c) 80 MeV Xe, (d)70 MeV I, (e) 80 MeV I を照射した時の微細組織変化

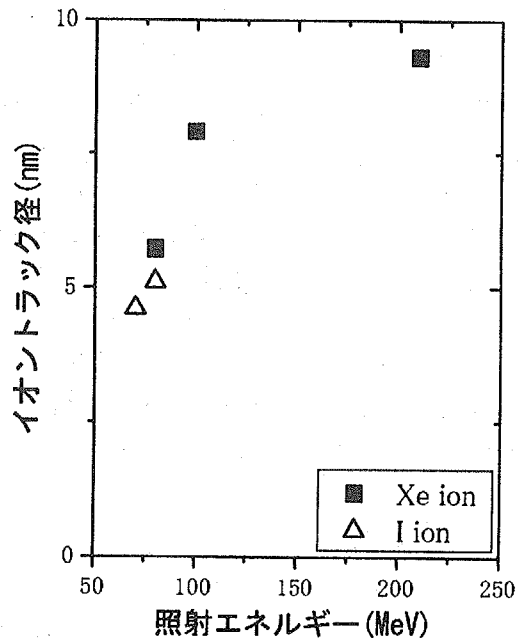


図 2. CeO<sub>2</sub> 中に形成されたイオントラック径の照射エネルギー依存性

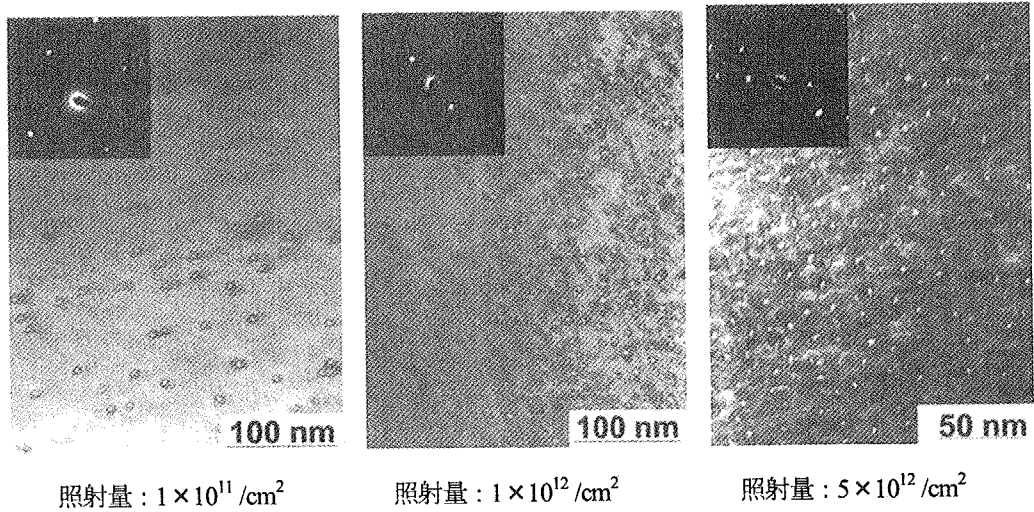


図3. CeO<sub>2</sub>に210 MeV Xe イオンを照射した時の微細組織の照射量依存性。

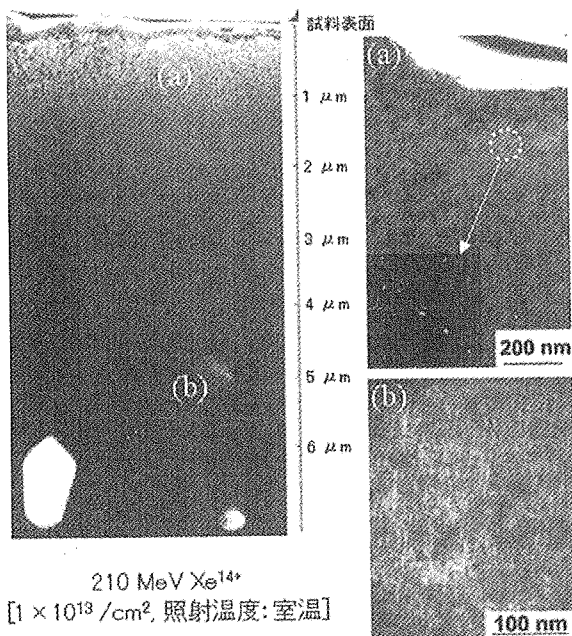


図4. 210 MeV Xe イオンを  $1 \times 10^{13}$  ions/cm<sup>2</sup> まで照射した試料の断面組織の代表的な明視野像。(a) 照射深さ  $1 \mu\text{m}$  以下の領域, (b) 照射深さ  $5 \mu\text{m}$  領域の拡大図

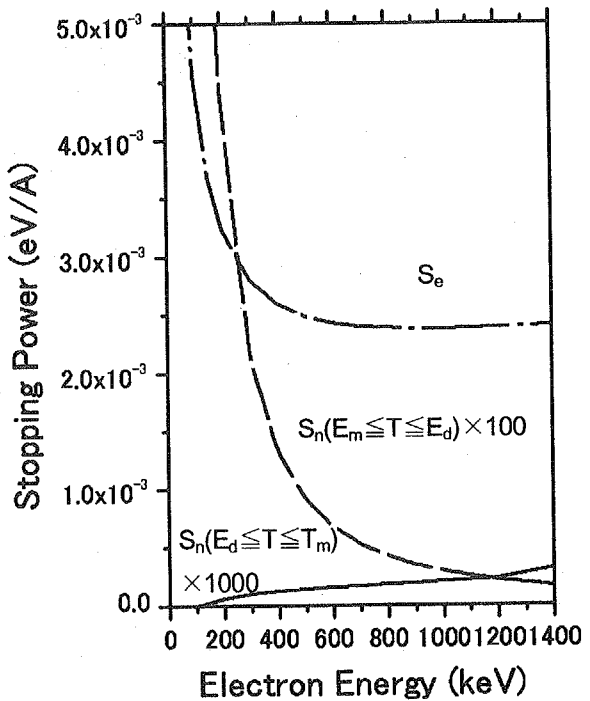


図5. CeO<sub>2</sub>における電子線の核的阻止能( $S_n$ )と電子の阻止能( $S_e$ )の照射エネルギー依存性。CeO<sub>2</sub>における弾き出し閾エネルギーは各々 $E_d(\text{Ce}) : 40 \text{ eV}$ ,  $E_d(\text{O}) : 20 \text{ eV}$ として計算。

References

- [1] J.O. Barner, M.E. Cunningham, M.D. Freshley, and D.D. Lanning, HBEP-61, 1990, Battelle Pacific Northwest Laboratories.
- [2] T. Sonoda, M. Kinoshita, and etc., Nucl. Instr. and Meth. B, 191 (2002) 622-628
- [3] 藪崎こずえ、佐々木宏和、古川電工時報 第110号、2002.
- [4] K. Yasuda, and C. Kinoshita, Nucl. Instr. and Meth. B, 191 (2002) 559-564

物質科学シンポジウム

「タンデム領域の重イオン科学」研究会

—RNB 開発と利用に向けて—

平成14年1月8日、9日

日本原子力研究所 東海研究所

先端基礎研究交流棟 大会議室、ロビー

研究会編集委員

物質科学研究部次長		池添 博
物質科学研究部事務		川上 進
物質科学研究部	加速器管理室	吉田 忠
		竹内 未広
	原子核科学研究グループ	大島 真澄
	材料照射解析研究グループ	左高 正雄
		(岩瀬 彰宏)
環境科学研究部	放射性核種データ解析研究グループ	篠原 伸夫
先端基礎センター	多体ハドロン系理論研究グループ	千葉 敏
	重元素単一原子化学研究グループ	永目諭一郎

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
秋山 和彦	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
浅井 雅人	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
旭 耕一郎	東京工業大学大学院 理工学研究科	152-0033	東京都目黒区大岡山2-12-2	
阿部 信市	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
有賀 武夫	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
飯島 明彦	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
飯田 邦利	(株) アトックス	319-1112	那珂郡東海村村松161-2	
飯村 秀紀	日本原子力研究所 原子核科学グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
池添 博	日本原子力研究所 重元素核物理研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石井 哲朗	日本原子力研究所 重元素核物理研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石川 拓司	茨城大学			
石川 法人	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石崎 暢洋	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
石橋 輝雄	北海道大学 工学部量子物理学専攻	060-8628	札幌市北区北13西8	
市川 進一	日本原子力研究所 重元素核物理研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
稲吉 繁一	茨城大学			
今井 誠	京都大学 工学系研究科	611-0011	京都府宇治市五ヶ庄	
岩瀬 彰宏	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
岩本 昭	日本原子力研究所 東海研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
岩本 修	日本原子力研究所 核データセンター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
宇佐見 考弘	(株) アトックス	289-1592	山武郡松尾町下大蔵452 第一ラジオアイソトープ研究所	
宇都野 讓	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
枝川 閔雄	(株) アトックス	104-0041	東京都中央区新富2-3-4	
王 海鳴	高エネルギー加速器研究機構	305-0801	つくば市大穂1-1	
大内 勲	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
大内 利勝	(株) アトックス	311-1313	東茨城郡大洗町成田町389-7	
大島 真澄	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
大塚 英男	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
大槻 勤	東北大学大学院 理学研究科	982-0826	仙台市太白区三神峯1-2-1	
大矢 進	新潟大学理学部	950-2181	新潟市五十嵐2の町8050	
岡安 悟	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
長 明彦	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
尾崎 卓郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
片山 一郎	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
加藤 輝雄	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
金子 哲也	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
金子 敏明	岡山理科大学 応用物理学科	700-0005	岡山市理大町1-1	
株本 裕史	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
川上 宏金	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
川上 進	日本原子力研究所 物質科学研究部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
神田 将	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
工藤 久昭	新潟大学 理学部	950-2181	新潟市五十嵐2の町8050	
久保山 智司	宇宙開発事業団	305-8505	つくば市千現2-1-1	
車田 亮	茨城大学工学部 超塑性工学研究センター	316-8511	日立市中成沢町4-12-1	
小泉 光生	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
小澤 皓雄	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
小松 征史	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
小松原 康敏	日本原子力研究所 物質科学研究部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
坂田 文彦	茨城大学理学部 数理科学科	310-0056	水戸市文京2-1-1	
佐川 弘幸	会津大学 総合数理センター	965-8580	福島県会津若松市一箕町鶴賀	
櫻井 博儀	東京大学大学院 理学系研究科	113-0033	東京都文京区本郷7-3-1	
櫻山 久志	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1106	那珂郡東海村白方白根2-4	
左高 正雄	日本原子力研究所 極限物性研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
佐藤 健一郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
佐藤 学	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
鹿園 直基	放射線計測協会	310-0851	那珂郡東海村	



氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
静間 俊行	日本原子力研究所 自由電子レーザー研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
篠原 伸夫	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
柴田 理尋	名古屋大学工学部	464-0814	名古屋市千種区不老町	
柴田 猛順	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
柴田 裕実	京都大学大学院工学研究科 量子システム工学グループ	606-8501	京都市左京区吉田本町	
清水 良文	九州大学 理学部 物理学科	810-8560	福岡市中央区六本松4-2-1	
新藤 浩之	宇宙開発事業団	305-8505	つくば市千現2-1-1	
須貝 宏行	日本原子力研究所 アイソトープ開発室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
菅原 昌彦	千葉工業大学 自然系物理	275-0016	千葉市習志野市芝園2-1-1	
杉山 康治	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
関 暁之	茨城大学大学院	310-0903	水戸市堀町977 国際交流会館A109	
染河 秀治	宇宙開発事業団	305-8505	つくば市千現2-1-1	
高橋 成人	大阪大学大学院 理学研究科	560-0043	豊中市待兼山町1-1	
高橋 秀武	(株)アトックス	319-1112	那珂郡東海村村松161-2	
竹内 未広	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
館盛 勝一	日本原子力研究所 物質科学研究部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
田山 豪一	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
千葉 敏	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
知見 康弘	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
塚田 和明	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
月橋 芳広	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
鄭 淳讀	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
寺澤 倫孝	姫路工業大学 高度産業科学技術研究所	671-2201	兵庫県赤穂郡上郡町光都3-1-2	
藤 暢輔	日本原子力研究所 原子核科学研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
豊嶋 厚史	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
内藤 明	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
中沢 哲也	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
仲野谷 孝充	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
中原 弘道	東京都立大	158-0091	東京都世田谷区中町1-7-14	
永目 論一郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
西尾 勝久	日本原子力研究所 重元素核物理研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
西中 一郎	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
仁杉 光	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1106	那珂郡東海村白方白根2-4	
根本 傳次郎	(株)アトックス	319-1112	那珂郡東海村村松161-2	
花島 進	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
羽場 宏光	理化学研究所	351-0106	埼玉県和光市広沢2-1	
早川 岳人	日本原子力研究所 自由電子レーザー研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
林 承鐘	日本原子力研究所 先端基礎研究センター	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
平尾 敏雄	日本原子力研究所 材料開発部	370-1292	群馬県高崎市高貴町1233	
平田 勝	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
広瀬 篤志	日本原子力研究所	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
藤井 義雄	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
北條 智博	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
北條 喜一	日本原子力研究所 材料照射解析研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
堀江 活三	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
堀口 隆良	広島国際大学 保健医療学部	724-0695	広島県賀茂郡黒瀬町学園台555-36	
前田 裕司	広島国際学院大学	739-0321	広島市安芸区中野6-20-1	
松田 純夫	宇宙開発事業団	305-8505	つくば市千現2-1-1	
松田 誠	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
松波 紀明	名古屋大学 工学研究科	464-0814	名古屋市千種区不老町	
松本 徳真	日本原子力研究所 放射光科学研究センター	679-5148	兵庫県佐用郡三日月町光都1-1-1	
光岡 真一	日本原子力研究所 重元素核物理研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
峰原 英介	日本原子力研究所 自由電子レーザー研究グループ	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
宮武 宇也	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所	305-0801	つくば市大穂1-1	
Peter Moller	Theoretical Division LANL		Los Alamos, New Mexico 87545, USA	
森川 恒安	九州大学 理学部物理	812-0053	福岡市東区箱崎6-10-1	

氏名	勤務先	郵便番号	住所	(50音順)
森山 健太郎	茨城大学			
山口 恭弘	日本原子力研究所 保健物理部	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
吉田 忠	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	
吉田 崇広	日本原子力研究所 加速器管理室	319-1195	那珂郡東海村白方白根2-4	

**This is a blank page.**

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10<sup>-19</sup> J  
1 u = 1.66054 × 10<sup>-27</sup> kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリ	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10<sup>-10</sup> m  
1 b = 100 fm = 10<sup>-28</sup> m<sup>2</sup>  
1 bar = 0.1 MPa = 10<sup>5</sup> Pa  
1 Gal = 1 cm/s<sup>2</sup> = 10<sup>-2</sup> m/s<sup>2</sup>  
1 Ci = 3.7 × 10<sup>10</sup> Bq  
1 R = 2.58 × 10<sup>-4</sup> C/kg  
1 rad = 1 cGy = 10<sup>-2</sup> Gy  
1 rem = 1 cSv = 10<sup>-2</sup> Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N (=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m<sup>2</sup>) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))  
動粘度 1 m<sup>2</sup>/s = 10<sup>4</sup> St (ストークス) (cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg (Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.35951 × 10 <sup>-3</sup>	1.31579 × 10 <sup>-3</sup>	1	1.93368 × 10 <sup>-2</sup>
	6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	7.03070 × 10 <sup>-2</sup>	6.80460 × 10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813 × 10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150 × 10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407 × 10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487 × 10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082 × 10 <sup>19</sup>
	3.6 × 10 <sup>6</sup>	3.67098 × 10 <sup>5</sup>	1	8.59999 × 10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522 × 10 <sup>6</sup>	2.24694 × 10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 <sup>-6</sup>	1	3.96759 × 10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272 × 10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506 × 10 <sup>-3</sup>	1	8.46233 × 10 <sup>18</sup>
	1.60218 × 10 <sup>19</sup>	1.63377 × 10 <sup>20</sup>	4.45050 × 10 <sup>-26</sup>	3.82743 × 10 <sup>-20</sup>	1.51857 × 10 <sup>-22</sup>	1.18171 × 10 <sup>-19</sup>	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)  
= 4.184 J (熱化学)  
= 4.1855 J (15 °C)  
= 4.1868 J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS (仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

物質科学シンポジウム「タンデム領域の重イオン科学」研究会 2003年1月8日～1月9日、日本原子力研究所東海研究所

**R100**

古紙配合率100%  
白色度70%再生紙を使用しています。